

PAT-NO: JP02006016384A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2006016384 A

TITLE: AMINE COMPOUND, AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT  
DEVICE CONTAINING THE SAME

PUBN-DATE: January 19, 2006

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
TOTANI, YOSHIYUKI	N/A
TANABE, YOSHIMITSU	N/A
OCHI, TAKAHIKO	N/A
TSUKADA, HIDETAKA	N/A
SHIMAMURA, TAKEHIKO	N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
MITSUI CHEMICALS INC	N/A

APPL-NO: JP2005159559

APPL-DATE: May 31, 2005

PRIORITY-DATA: 2004165607 ( June 3, 2004)

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent device containing a new amine compound.

SOLUTION: The new amine compound is represented by the general formula(1) [ wherein, R1 to R3 are each a halogen atom, (substituted) amino or - (X)n'-Z group[ wherein, Z is a (substituted) straight-chain, branched-chain or cyclic alkyl, (substituted) aryl or (substituted) aralkyl; X is an oxygen atom or sulfur atom; and n' is 0 or 1 ]; l, m and n are each an integer of 0-4; s and t

are each an integer of 0-5, wherein  $s+1 \leq 5$ ,  $t+m \leq 5$ , and at least one of s and t is an integer of  $\geq 1$  ]. The organic electroluminescent device with high stability and durability containing this amine compound is also provided.

COPYRIGHT: (C)2006,JPO&NCIPI

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2006-16384

(P2006-16384A)

(43) 公開日 平成18年1月19日(2006.1.19)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>C07D 241/42</b> (2006.01)	C07D 241/42 CSP	3K007
<b>C07D 401/10</b> (2006.01)	C07D 401/10	4C063
<b>C09K 11/06</b> (2006.01)	C09K 11/06 650	
<b>H01L 51/50</b> (2006.01)	C09K 11/06 690	
	H05B 33/14 B	
審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 64 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2005-159559 (P2005-159559)  
 (22) 出願日 平成17年5月31日(2005.5.31)  
 (31) 優先権主張番号 特願2004-165607 (P2004-165607)  
 (32) 優先日 平成16年6月3日(2004.6.3)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(71) 出願人 000005887  
 三井化学株式会社  
 東京都港区東新橋一丁目5番2号  
 (72) 発明者 戸谷 由之  
 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内  
 (72) 発明者 田辺 良満  
 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内  
 (72) 発明者 越智 貴彦  
 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内  
 (72) 発明者 塚田 英孝  
 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内

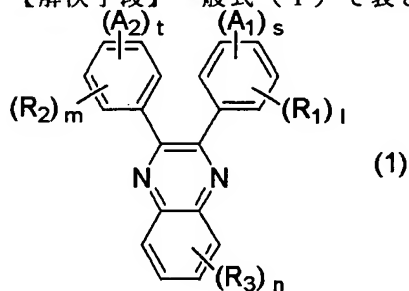
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アミン化合物、および該アミン化合物を含有する有機電界発光素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 新規なアミン化合物を含有してなる有機電界発光素子。

【解決手段】 一般式(1)で表されるアミン化合物。



【式中、 $R_1 \sim R_3$  は、ハロゲン原子、置換または未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基(式中 $Z$ は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$ は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表し、 $l$ 、 $m$ および $n$ は0~4の整数を表し、 $s$ および $t$ は0~5の整数を表し、 $s+1 \leq 5$ 、 $t+m \leq 5$ であり、 $s$ および $t$ の少なくとも一方は1以上の整数である]

【効果】 安定性、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供。

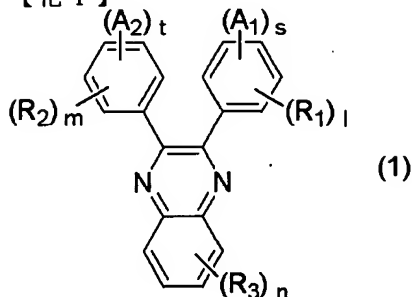
【選択図】 なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

一般式 (1) (化 1) で表されるアミン化合物。

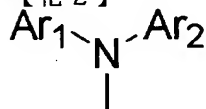
## 【化 1】



10

〔式中、 $R_1 \sim R_3$  は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基 (式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す) を表し、 $l, m$  および  $n$  は 0 ~ 4 の整数を表し、 $l, m$  および  $n$  が 2 以上の場合、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 $A_1$  および  $A_2$  は下記一般式 (2) で表される基

## 【化 2】



20

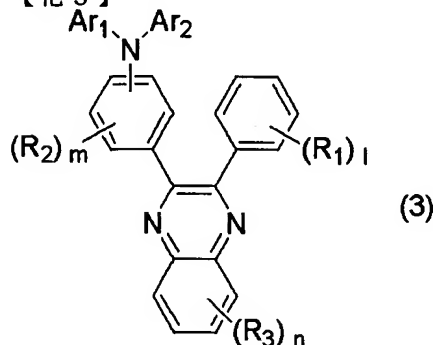
〔式中、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  が、互いに結合して環を形成していてもよい) を表し、 $s$  および  $t$  は 0 ~ 5 の整数を表し、 $s+1 \leq 5$ 、 $t+m \leq 5$  であり、 $s$  および  $t$  の少なくとも一方は 1 以上の整数である〕

30

## 【請求項 2】

一般式 (3) (化 3) で表される請求項 1 記載のアミン化合物。

## 【化 3】



40

〔式中、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基 (式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す) を表し、 $R_3$  は、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基 (式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換の

50

アラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表し、 $l$ 、 $m$ および $n$ は0~4の整数を表し、 $l$ 、 $m$ および $n$ が2以上の場合、 $R_1 \sim R_3$ はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 $A_{r1}$ および $A_{r2}$ は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $A_{r1}$ および $A_{r2}$ が、互いに結合して環を形成していてもよく、 $-N A_{r1} A_{r2}$ の置換位置はベンゼン環のo-位、m-位およびp-位から選ばれる任意の置換位置である]

【請求項3】

一般式(1)において、 $s$ および $t$ のどちらか一方が0であり、他方が2以上の整数であり、 $R_1$ および $R_2$ は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)n'-Z$ 基(式中、Zは置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表し、 $R_3$ はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$ 基(式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表す請求項1記載のアミン化合物。

10

【請求項4】

一般式(1)において、 $A_1$ および $A_2$ が以下の条件(イ)または(ロ)を満たし、 $R_1$ および $R_2$ は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)n'-Z$ 基(式中、Zは置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表し、 $R_3$ はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$ 基(式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表す請求項1記載のアミン化合物。

20

条件(イ)：一般式(1)において、 $s$ および $t$ がそれぞれ1以上の整数である場合、 $A_1$ および $A_2$ の少なくとも一方はキノキサリン環の結合したベンゼン環上のp-位以外の置換位置に結合する。

30

条件(ロ)：一般式(1)において、 $s$ および $t$ がそれぞれ1以上の整数であり、 $A_1$ および $A_2$ の両方がキノキサリン環の結合したベンゼン環上のp-位に位置する場合、 $A_1$ および/または $A_2$ の一般式(2)で表される基において、 $A_{r1}$ および/または $A_{r2}$ の少なくとも一方は3環以上の縮合炭化水素基を表す。

【請求項5】

一对の電極間に、請求項1~4記載のアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【請求項6】

請求項1~4記載のアミン化合物を含有する層が、電荷注入輸送層である請求項5記載の有機電界発光素子。

40

【請求項7】

電荷注入輸送層が正孔注入輸送層である請求項6記載の有機電界発光素子。

【請求項8】

電荷注入輸送層が電子注入輸送層である請求項6記載の有機電界発光素子。

【請求項9】

請求項1~4記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である請求項5記載の有機電界発光素子。

【請求項10】

一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項5~9のいずれかに記載の有機電界発光素子。

50

## 【請求項 11】

一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 5～10 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、新規なアミン化合物および該アミン化合物を含有してなる有機電界発光素子に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

電界発光現象を利用する電界発光素子は、液晶表示に比べて自発光型であるために視認性が高く、さらに高速な応答性が得られるため、ディスプレイ等に使用すると鮮明な画像表示が可能であり、また、全固体型素子であるために耐衝撃性に優れている等の特徴を有している。そのため、近年、薄型ディスプレイ、液晶ディスプレイのバックライト、あるいは平面光源などに広く使用されることが期待されている。

## 【0003】

ここで、電界発光素子は構成する材料により無機電界発光素子と、有機電界発光素子とに大別することができる。無機電界発光素子は硫化亜鉛等の無機材料を用いた分散型電界発光素子であるが、この分散型電界発光素子の駆動方式は高電界の印加により、加速された電子が発光中心を衝突励起して発光させるという所謂「衝突励起型発光」であるため、高い交流電圧で駆動させる必要がある。そのため、駆動回路が複雑になったり、また、輝度が低い等の課題を有している。

## 【0004】

一方、有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子：有機 EL 素子）は、電極から注入された電荷（正孔および電子）が有機化合物からなる発光層中で再結合して発光するという所謂「注入型発光」であるため、低電圧駆動することが可能である（非特許文献 1 及び特許文献 1）。また、有機化合物の分子設計を変更することによって、任意の発光色、特性を容易に変化させることが可能であるという利点もある。このため現在では、種々の材料や素子構成等が提案され、研究開発が活発化している。

## 【0005】

その一方で、これまでに提案された材料を用いる有機電界発光素子には、まだ様々な問題・課題が残されている。例えば、駆動状態、あるいは非駆動状態にも関わらず、保存するだけで素子の機能が劣化して発光輝度が低下するという発光寿命上の問題が存在する。また、一般的に発光輝度がまだ低く、実用上充分ではない。

## 【0006】

発光輝度を向上させる方法として発光層にホスト材料としてトリス（8-キノリノラート）アルミニウム等を使用し、ゲスト化合物としてクマリン誘導体、ピラン誘導体を使用した有機電界発光素子（非特許文献 2）、ゲスト化合物として N, N-ジメチルキナクリドンを使用した有機電界発光素子（例えば、非特許文献 3）、ゲスト化合物としてルブレノを使用した有機電界発光素子（例えば、非特許文献 4）が提案されている。また、発光層の材料としてアントラセン誘導体を用いた有機電界発光素子も提案されている（特許文献 2、特許文献 3）。さらには、発光層の材料としてキノキサリン誘導体を用いた有機電界発光素子（特許文献 4）、また電子輸送層としてキノキサリン誘導体（ピラジノキノキサリン誘導体）を使用した有機電界発光素子も提案されている（特許文献 5）。しかしながら、これらの化合物を使用した有機電界発光素子も、まだ、安定性、耐久性の面で問題があり、充分とはいえない。

## 【0007】

現在では、さらに高輝度に発光し、発光寿命の長い、安定性、耐久性に優れた有機電界発光素子が望まれている。

【非特許文献 1】 Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)

【非特許文献2】 J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)  
 【非特許文献3】 Appl. Phys. Lett., 70, 1665 (1997)  
 【非特許文献4】 Jpn. J. Appl. Phys., 34, L824 (1995)  
 【特許文献1】 特開昭63-264692号公報  
 【特許文献2】 特開平8-126000号公報  
 【特許文献3】 特開平10-36832号公報  
 【特許文献4】 特開平7-53954号公報  
 【特許文献5】 特開平9-3342号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0008】

本発明の課題は、アミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子を提供することである。さらに詳しくは、有機電界発光素子の発光材料等に適した、アミン化合物、および該化合物を使用した、安定性、耐久性に優れ、且つ耐熱性の高い有機電界発光素子を提供することである。

【課題を解決するための手段】

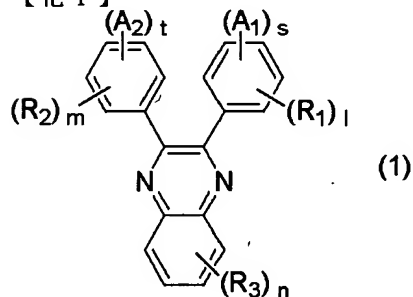
【0009】

本発明者らは、上記課題を解決するために、種々のアミン化合物および有機電界発光素子に関して鋭意検討を行った結果、本発明を完成させるに至った。すなわち、本発明は、  
 <1>： 一般式(1)(化1)で表されるアミン化合物、

20

【0010】

【化1】



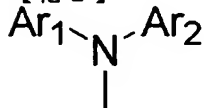
30

【0011】

【式中、 $R_1 \sim R_3$  は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す）を表し、 $l, m$  および  $n$  は0～4の整数を表し、 $l, m$  および  $n$  が2以上の場合、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 $A_1$  および  $A_2$  は下記一般式(2)で表される基

【0012】

【化2】



(2)

40

【0013】

（式中、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  が、互いに結合して環を形成していてもよい）を表し、 $s$  および  $t$  は

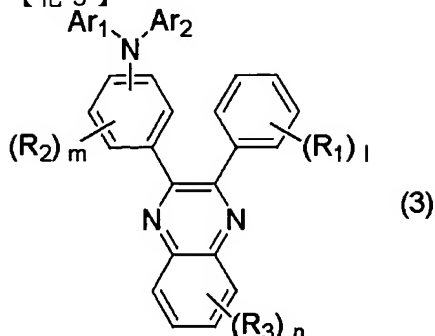
50

0～5の整数を表し、 $s+1 \leq 5$ 、 $t+m \leq 5$ であり、 $s$ および $t$ の少なくとも一方は1以上の整数である]

<2>: 一般式(3)(化3)で表される<1>記載のアミン化合物、

【0014】

【化3】



10

【0015】

[式中、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)^{n'}-Z$  基(式中、 $Z$  は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す)を表し、 $R_3$  は、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアミノ基、あるいは $-(X)^{n'}-Z$  基(式中、 $Z$  は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す)を表し、 $l$ 、 $m$  および  $n$  は0～4の整数を表し、 $l$ 、 $m$  および  $n$  が2以上の場合、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  が、互いに結合して環を形成していてもよく、 $-NAr_1Ar_2$  の置換位置はベンゼン環の $o$ -位、 $m$ -位および $p$ -位から選ばれる任意の置換位置である]

20

【0016】

<3>: 一般式(1)において、 $s$  および  $t$  のどちらか一方が0であり、他方が2以上の整数であり、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)^{n'}-Z$  基(式中、 $Z$  は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す)を表し、 $R_3$  はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)^{n'}-Z$  基(式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す)を表す<1>記載のアミン化合物、

30

<4>: 一般式(1)において、 $A_1$  および  $A_2$  が以下の条件(イ)または(ロ)を満たし、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)^{n'}-Z$  基(式中、 $Z$  は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す)を表し、 $R_3$  はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)^{n'}-Z$  基(式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は0または1を表す)を表す<1>記載のアミン化合物、

40

条件(イ): 一般式(1)において、 $s$  および  $t$  がそれぞれ1以上の整数である場合、 $A_1$  および  $A_2$  の少なくとも一方はキノキサリン環の結合したベンゼン環上の $p$ -位以外

50



の置換位置に結合する。

条件(ロ)：一般式(1)において、sおよびtがそれぞれ1以上の整数であり、 $A_1$ および $A_2$ の両方がキノキサリン環の結合したベンゼン環上のp-位に位置する場合、 $A_1$ および/または $A_2$ の一般式(2)で表される基において、 $A_{r1}$ および/または $A_{r2}$ の少なくとも一方は3環以上の縮合炭化水素基を表す。

<5>：一对の電極間に、<1>~<4>記載のアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

<6>：<1>~<4>記載のアミン化合物を含有する層が、電荷注入輸送層である<5>記載の有機電界発光素子、

<7>：電荷注入輸送層が正孔注入輸送層である<6>記載の有機電界発光素子、

10

<8>：電荷注入輸送層が電子注入輸送層である<6>記載の有機電界発光素子、

<9>：<1>~<4>記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である<5>記載の有機電界発光素子、

<10>：一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する<5>~<10>のいずれかに記載の有機電界発光素子、

<11>：一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する<5>~<10>のいずれかに記載の有機電界発光素子、

を提供するものである。

【発明の効果】

【0017】

20

本発明により、新規なアミン化合物、および該アミン化合物を使用した発光寿命が長く、耐久性に優れた、耐熱性の高い有機電界発光素子を提供することが可能になる。

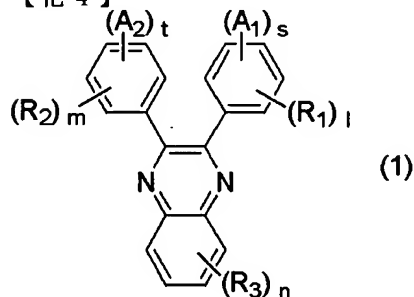
【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

以下、本発明に関し詳細に説明する。本発明のアミン化合物は一般式(1)(化4)で表される化合物である。

【0019】

【化4】



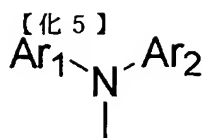
30

【0020】

式中、 $R_1 \sim R_3$ は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$ 基(式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す)を表し、l、mおよびnは0~4の整数を表し、l、mおよびnが2以上の場合、 $R_1 \sim R_3$ は隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 $A_1$ および $A_2$ は下記一般式(2)(化5)で表される基

40

【0021】



(2)

## 【0022】

(式中、 $\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  が、互いに結合して環を形成していてもよい)を表し、 $s$  および  $t$  は 0～5 の整数を表し、 $s+1 \leq 5$ 、 $t+m \leq 5$  であり、 $s$  および  $t$  の少なくとも一方は 1 以上の整数である。

10

## 【0023】

本願明細書において、「置換または未置換の」とは、「ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、アラルキルオキシ基、あるいはアラルキルチオ基で単置換または多置換された、または未置換の」を意味する。

## 【0024】

これらの基(但し、ハロゲン原子を除く)の具体例を示せば、アルキル基としては炭素数 1～16 のアルキル基、アルコキシ基としては炭素数 1～16 のアルコキシ基、アルキルチオ基としては炭素数 1～16 のアルキルチオ基、アリール基としては炭素数 4～20 のアリール基、アリールオキシ基としては炭素数 4～20 のアリールオキシ基、アリールチオ基としては炭素数 4～20 のアリールチオ基、アラルキル基としては炭素数 7～30 のアラルキル基、アラルキルオキシ基としては炭素数 7～30 のアラルキルオキシ基、アラルキルチオ基としては炭素数 7～30 のアラルキルチオ基が挙げられる。

20

## 【0025】

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_3$  は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(\text{X})_{n'}-\text{Z}$  基(式中、 $\text{Z}$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $\text{X}$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す)を表す。

30

## 【0026】

$\text{R}_1 \sim \text{R}_3$  は、好ましくは、ハロゲン原子、炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 4～20 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 5～20 の置換または未置換のアラルキル基で置換された、もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(\text{X})_{n'}-\text{Z}$  基(式中  $\text{Z}$  は、置換または未置換の炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 4～20 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 7～30 の置換または未置換のアラルキル基を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す)を表し、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～8 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 4～16 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 5～16 の置換または未置換のアラルキル基により置換された、もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(\text{X})_{n'}-\text{Z}$  基(式中  $\text{Z}$  は、炭素数 1～8 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 4～16 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 5～16 の置換または未置換のアラルキル基を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す)を表す。

40

## 【0027】

また、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_3$  は、好ましくは、 $\text{R}_1$  および  $\text{R}_2$  がハロゲン原子、あるいは  $-(\text{X})_{n'}-\text{Z}$  (式中、 $\text{Z}$  は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $\text{X}$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す)を表し、 $\text{R}_3$  が、ハロゲン原子、

50

置換もしくは無置換のアルキル基、あるいは $-(X)n'-Z$ 基（式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$ は0または1を表す）を表す。

# 【0028】

$R_1 \sim R_3$ のハロゲン原子の具体例としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子あるいはヨウ素原子を挙げることができる。

# 【0029】

$R_1 \sim R_3$ の置換もしくは未置換のアミノ基の具体例としては、アミノ基、N-メチルアミノ基、N-エチルアミノ基、N-n-プロピルアミノ基、N-イソプロピルアミノ基、N-n-ブチルアミノ基、N-イソブチルアミノ基、N-sec-ブチルアミノ基、N-tert-ブチルアミノ基、N-n-ペンチルアミノ基、N-シクロペンチルアミノ基、N-n-ヘキシルアミノ基、N-シクロヘキシルアミノ基、N-ベンジルアミノ基、N-フェネチルアミノ基、N-フェニルアミノ基、N-(1-ナフチル)アミノ基、N-(2-ナフチル)アミノ基、N-(4-フェニルフェニル)アミノ基、N-(3-フェニルフェニル)アミノ基、N-(2-フェニルフェニル)アミノ基、N-(4-メチルフェニル)アミノ基、N-(2-メチルフェニル)アミノ基、N-(2-アントラニル)アミノ基、N-(9-アントラニル)アミノ基、N,N-ジメチルアミノ基、N,N-ジエチルアミノ基、N,N-ジ-n-プロピルアミノ基、N,N-ジ-イソプロピルアミノ基、N,N-ジ-n-ブチルアミノ基、N,N-ジ-イソブチルアミノ基、N,N-ジ-sec-ブチルアミノ基、N,N-ジ-n-ペンチルアミノ基、N,N-ジシクロペンチルアミノ基、N,N-ジシクロヘキシルアミノ基、N,N-ジベンジルアミノ基、N,N-ジフェネチルアミノ基、N-メチル-N-エチルアミノ基、N-メチル-N-n-プロピルアミノ基、N-メチル-N-イソプロピルアミノ基、N-メチル-N-n-ブチルアミノ基、N-メチル-N-tert-ブチルアミノ基、N-メチル-N-シクロペンチルアミノ基、N-メチル-N-シクロヘキシルアミノ基、N-メチル-N-ベンジルアミノ基、N-メチル-N-フェネチルアミノ基、N-エチル-N-tert-ブチルアミノ基、N-エチル-N-シクロヘキシルアミノ基、N-エチル-N-ベンジルアミノ基、N-イソプロピル-N-シクロペンチルアミノ基、N-イソプロピル-N-シクロヘキシルアミノ基、N-イソプロピル-N-ベンジルアミノ基、N-tert-ブチル-N-シクロヘキシルアミノ基、N-tert-ブチル-N-ベンジルアミノ基、N-シクロペンチル-N-ベンジルアミノ基、N-シクロヘキシル-N-ベンジルアミノ基、N,N-ジフェニルアミノ基、N,N-ジ(1-ナフチル)アミノ基、N,N-ジ(2-ナフチル)アミノ基、N,N-ジ(4-フェニルフェニル)アミノ基、N,N-ジ(3-メチルフェニル)アミノ基、N-フェニル-N-(1-ナフチル)アミノ基、N-フェニル-N-(2-ナフチル)アミノ基、N-フェニル-N-(4-フェニルフェニル)アミノ基、N-フェニル-N-(4-メチルフェニル)アミノ基、N-(1-ナフチル)-N-(4'-フェニルフェニル)アミノ基などの置換または未置換のアミノ基を挙げることができる。

# 【0030】

$R_1 \sim R_3$ の $-(X)n'-Z$ 基のZである置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、n-ヘキシル基、1-メチルペンチル基、4-メチル-2-ペンチル基、2-エチルブチル基、n-ヘブチル基、1-メチルヘキシル基、n-オクチル基、1-メチルヘブチル基、2-エチルヘキシル基、2-プロピルペンチル基、n-ノニル基、2,2-ジメチルヘブチル基、2,6-ジメチル-4-ヘブチル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、n-デシル基、1-エチルオクチル基、n-ウンデシル基、1-メチルデシル基、n-ドデシル基、n-トリデシル基、1-ヘキシルヘブチル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、1-ヘブチルオクチル基、n-ヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、1-オクチルノニル基、n-オク

タデシル基、1-ノニルデシル基、1-デシルウンデシル基、n-エイコシル基、n-ド  
 コシル基、n-テトラコシル基、シクロヘキシルメチル基、(1-イソプロピルシクロヘ  
 キシル)メチル基、2-シクロヘキシルエチル基、ボルネル基、イソボルネル基、1-ノ  
 ルボルニル基、2-ノルボルナンメチル基、1-ビスシクロ〔2.2.2〕オクチル基、1  
 -アダマンチル基、3-ノルアダマンチル基、1-アダマンチルメチル基、シクロブチル  
 基、シクロペンチル基、1-メチルシクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシ  
 クロヘキシル基、3-メチルシクロヘキシル基、2-メチルシクロヘキシル基、2,3-  
 ジメチルシクロヘキシル基、2,5-ジメチルシクロヘキシル基、2,6-ジメチルシク  
 ロヘキシル基、3,4-ジメチルシクロヘキシル基、3,5-ジメチルシクロヘキシル基  
 、2,4,6-トリメチルシクロヘキシル基、3,3,5-トリメチルシクロヘキシル基 10  
 、2,6-ジイソプロピルシクロヘキシル基、4-tert-ブチルシクロヘキシル基、3-  
 tert-ブチルシクロヘキシル基、4-フェニルシクロヘキシル基、2-フェニルシクロヘ  
 キシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロデシル基、シクロドデシル基、  
 シクロテトラデシル基、

# 【0031】

メトキシメチル基、エトキシメチル基、n-ブトキシメチル基、n-ヘキシルオキシメ  
 チル基、(2-エチルブチルオキシ)メチル基、n-オクチルオキシメチル基、n-デシ  
 ルオキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-n-プロポキシ  
 エチル基、2-イソプロポキシエチル基、2-n-ブトキシエチル基、2-n-ペンチル  
 オキシエチル基、2-n-ヘキシルオキシエチル基、2-(2'-エチルブチルオキシ) 20  
 エチル基、2-n-ヘプチルオキシエチル基、2-n-オクチルオキシエチル基、2-(  
 2'-エチルヘキシルオキシ)エチル基、2-n-デシルオキシエチル基、2-n-ドデ  
 シルオキシエチル基、2-n-テトラデシルオキシエチル基、2-シクロヘキシルオキシ  
 エチル基、2-メトキシプロピル基、3-メトキシプロピル基、3-エトキシプロピル基  
 、3-n-プロポキシプロピル基、3-イソプロポキシプロピル基、3-(n-ブトキシ)  
 プロピル基、3-(n-ペンチルオキシ)プロピル基、3-(n-ヘキシルオキシ)プロ  
 ピル基、3-(2'-エチルブトキシ)プロピル基、3-(n-オクチルオキシ)プロ  
 ピル基、3-(2'-エチルヘキシルオキシ)プロピル基、3-(n-デシルオキシ)プロ  
 ピル基、3-(n-ドデシルオキシ)プロピル基、3-(n-テトラデシルオキシ)プロ  
 ピル基、3-シクロヘキシルオキシプロピル基、4-メトキシブチル基、4-エトキシ 30  
 ブチル基、4-n-プロポキシブチル基、4-イソプロポキシブチル基、4-n-ブトキ  
 シブチル基、4-n-ヘキシルオキシブチル基、4-n-オクチルオキシブチル基、4-  
 n-デシルオキシブチル基、4-n-ドデシルオキシブチル基、5-メトキシペンチル基  
 、5-エトキシペンチル基、5-n-プロポキシペンチル基、6-エトキシヘキシル基、  
 6-イソプロポキシヘキシル基、6-n-ブトキシヘキシル基、6-n-ヘキシルオキシ  
 ヘキシル基、6-n-デシルオキシヘキシル基、4-メトキシシクロヘキシル基、7-エ  
 トキシヘプチル基、7-イソプロポキシヘプチル基、8-メトキシオクチル基、10-メ  
 トキシデシル基、10-n-ブトキシデシル基、12-エトキシドデシル基、12-イソ  
 プロポキシドデシル基、テトラヒドロフルフリル基、

# 【0032】

2-(2'-メトキシエトキシ)エチル基、2-(2'-エトキシエトキシ)エチル基 40  
 、2-(2'-n-ブトキシエトキシ)エチル基、3-(2'-エトキシエトキシ)プロ  
 ピル基、2-アリルオキシエチル基、2-(4'-ペンテニルオキシ)エチル基、3-ア  
 リルオキシプロピル基、3-(2'-ヘキセニルオキシ)プロピル基、3-(2'-ヘプ  
 テニルオキシ)プロピル基、3-(1'-シクロヘキセニルオキシ)プロピル基、4-ア  
 リルオキシブチル基、

# 【0033】

ベンジルオキシメチル基、2-ベンジルオキシエチル基、2-フェネチルオキシエチル  
 基、2-(4'-メチルベンジルオキシ)エチル基、2-(2'-メチルベンジルオキシ)  
 )エチル基、2-(4'-フルオロベンジルオキシ)エチル基、2-(4'-クロロベン 50

ジロキシ) エチル基、3-ベンジルオキシプロピル基、3-(4'-メトキシベンジルオキシ) プロピル基、4-ベンジルオキシブチル基、2-(ベンジルオキシメトキシ) エチル基、2-(4'-メチルベンジルオキシメトキシ) エチル基、

【0034】

フェニルオキシメチル基、4-メチルフェニルオキシメチル基、3-メチルフェニルオキシメチル基、2-メチルフェニルオキシメチル基、4-メトキシフェニルオキシメチル基、4-フルオロフェニルオキシメチル基、4-クロロフェニルオキシメチル基、2-クロロフェニルオキシメチル基、2-フェニルオキシエチル基、2-(4'-メチルフェニルオキシ) エチル基、2-(4'-エチルフェニルオキシ) エチル基、2-(4'-メトキシフェニルオキシ) エチル基、2-(4'-クロロフェニルオキシ) エチル基、2-(4'-プロモフェニルオキシ) エチル基、2-(1'-ナフチルオキシ) エチル基、2-(2'-ナフチルオキシ) エチル基、3-フェニルオキシプロピル基、3-(2'-ナフチルオキシ) プロピル基、4-フェニルオキシブチル基、4-(2'-エチルフェニルオキシ) ブチル基、5-(4'-tert-ブチルフェニルオキシ) ペンチル基、6-(2'-クロロフェニルオキシ) ヘキシル基、8-フェニルオキシオクチル基、10-フェニルオキシデシル基、10-(3'-クロロフェニルオキシ) デシル基、2-(2'-フェニルオキシエトキシ) エチル基、3-(2'-フェニルオキシエトキシ) プロピル基、4-(2'-フェニルオキシエトキシ) ブチル基、

【0035】

n-ブチルチオメチル基、n-ヘキシルチオメチル基、2-メチルチオエチル基、2-エチルチオエチル基、2-n-ブチルチオエチル基、2-n-ヘキシルチオエチル基、2-n-オクチルチオエチル基、2-n-デシルチオエチル基、3-メチルチオプロピル基、3-エチルチオプロピル基、3-n-ブチルチオプロピル基、4-エチルチオブチル基、4-n-プロピルチオブチル基、4-n-ブチルチオブチル基、5-エチルチオペンチル基、6-メチルチオヘキシル基、6-エチルチオヘキシル基、6-n-ブチルチオヘキシル基、8-メチルチオオクチル基、2-(2'-メトキシエチルチオ) エチル基、4-(3'-エトキシプロピルチオ) ブチル基、2-(2'-エチルチオエチルチオ) エチル基、2-アリルチオエチル基、2-ベンジルチオエチル基、3-(4'-メチルベンジルチオ) プロピル基、4-ベンジルチオブチル基、2-(2'-ベンジルオキシエチルチオ) エチル基、3-(3'-ベンジルチオプロピルチオ) プロピル基、

【0036】

2-フェニルチオエチル基、2-(4'-メトキシフェニルチオ) エチル基、2-(2'-フェニルオキシエチルチオ) エチル基、3-(2'-フェニルチオエチルチオ) プロピル基、

【0037】

フルオロメチル基、3-フルオロプロピル基、6-フルオロヘキシル基、8-フルオロオクチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロエチル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-プロピル基、1, 1, 3-トリヒドロパーフルオロ-n-プロピル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-ブチル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-ペンチル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-ヘキシル基、6-フルオロヘキシル基、4-フルオロシクロヘキシル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-オクチル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-デシル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-ドデシル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-テトラデシル基、1, 1-ジヒドロパーフルオロ-n-ヘキサデシル基、パーフルオロ-n-ヘキシル基、ジクロロメチル基、2-クロロエチル基、3-クロロプロピル基、4-クロロシクロヘキシル基、7-クロロヘブチル基、8-クロロオクチル基、2, 2, 2-トリクロロエチル基、

【0038】

2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシブチル基、4-ヒドロキシブチル基、6-ヒドロキシヘキシル基、5-ヒド

ロキシヘブチル基、8-ヒドロキシオクチル基、10-ヒドロキシデシル基、12-ヒドロキシドデシル基、2-ヒドロキシシクロヘキシル基などの置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

# 【0039】

また、 $R_1 \sim R_3$  の  $-(X)_n-Z$  基の  $Z$  である置換または未置換のアリール基の具体例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、9-メチル-10-アントラセニル基、9-フェニル-10-アントラセニル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、9-メチル-10-フェナントリル基、9-フェニル-10-フェナントリル基、1-メチル-9-フェナントリル基、1-フェニル-9-フェナントリル基、2-メチル-9-フェナントリル基、2-フェニル-9-フェナントリル基、1, 8-ジメチル-9-フェナントリル基、1, 8-ジフェニル-9-フェナントリル基、2-クロロ-9-フェナントリル基、2-フルオロ-9-フェナントリル基、2, 7-ジクロロ-9-フェナントリル基、2, 7-ジメチル-9-フェナントリル基、2, 7-ジフェニル-9-フェナントリル基、2, 7, 9-トリメチル-10-フェナントリル基、2, 7, 9-トリフェニル-10-フェナントリル基、

# 【0040】

1-ピレニル基、2-ピレニル基、1-フェニル-2-ピレニル基、1-メチル-2-ピレニル基、2-フェニル-1-ピレニル基、2-メチル-1-ピレニル基、4, 5-ジメチル-1-ピレニル基、6-フェニル-1-ピレニル基、6-メチル-1-ピレニル基、6-tert-ブチル-1-ピレニル基、6-シクロヘキシル-1-ピレニル基、7-フェニル-1-ピレニル基、7-メチル-1-ピレニル基、7-フェニル-2-ピレニル基、7-メチル-2-ピレニル基、7-tert-ブチル-2-ピレニル基、1, 8-ジフェニル-2-ピレニル基、1, 8-ジメチル-2-ピレニル基、5, 9-ジシクロヘキシル-2-ピレニル基、3, 6-ジフェニル-1-ピレニル基、3, 6-ジメチル-1-ピレニル基、3, 6-ジ-tert-ブチル-1-ピレニル基、8-メチル-1-ピレニル基、8-tert-ブチル-1-ピレニル基、8-フェニル-1-ピレニル基、9-フェニル-1-ピレニル基、9-フェニル-2-ピレニル基、9-メチル-2-ピレニル基、10-フェニル-1-ピレニル基、10-メチル-1-ピレニル基、10-フェニル-2-ピレニル基、10-メチル-2-ピレニル基、9-メチル-1-ピレニル基、3, 6, 8-トリメチル-1-ピレニル基、3, 6, 8-トリフェニル-1-ピレニル基、3, 6-ジメチル-8-フェニル-1-ピレニル基、9, 10-ジメチル-1-ピレニル基、9, 10-ジフェニル-1-ピレニル基、4, 9-ジメチル-1-ピレニル基、4, 9-ジフェニル-1-ピレニル基、9, 5-ジメチル-2-ピレニル基、4, 5, 9, 10-トリメチル-2-ピレニル基、3-フルオランテニル基、2-フルオランテニル基、7-フルオランテニル基、8-フルオランテニル基、4-キノリニル基、3-キノリニル基、2-キノリニル基、4-ピリジニル基、3-ピリジニル基、2-ピリジニル基、2-ピリミジニル基、2-ピリダジニル基、2-ピラジニル基、3-フラニル基、2-フラニル基、3-チエニル基、2-チエニル基、2-ベンゾフラニル基、2-ベンゾチオフェニル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基、2-ベンゾオキサゾリル基、2-ベンゾチアゾリル基、2-ベンゾイミダゾリル基、4-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、2-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、3-エチルフェニル基、2-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、2-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-イソブチルフェニル基、4-sec-ブチルフェニル基、2-sec-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、3-tert-ブチルフェニル基、2-tert-ブチルフェニル基、4-n-ペンチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、2-ネオペンチルフェニル基、4-tert-ペンチルフェニル基、4-n-ヘキシルフェニル基、4-(2'-エチルブチル)フェニル基、4-n-ヘブチルフェニル基、4-n-オクチルフェニル基、4-(2'-エチルヘキシル)フェニル基、4-tert-オクチルフェニル基、

ル基、4-n-デシルフェニル基、4-n-ドデシルフェニル基、4-n-テトラデシルフェニル基、4-シクロペンチルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-(4'-メチルシクロヘキシル)フェニル基、4-(4'-tert-ブチルシクロヘキシル)フェニル基、3-シクロヘキシルフェニル基、2-シクロヘキシルフェニル基、4-エチル-1-ナフチル基、6-n-ブチル-2-ナフチル基、2,4-ジメチルフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、2,6-ジメチルフェニル基、2,4-ジエチルフェニル基、2,3,5-トリメチルフェニル基、2,3,6-トリメチルフェニル基、3,4,5-トリメチルフェニル基、2,6-ジエチルフェニル基、2,5-ジイソプロピルフェニル基、2,6-ジイソブチルフェニル基、2,4-ジ-tert-ブチルフェニル基、2,5-ジ-tert-ブチルフェニル基、4,6-ジ-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、5-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、4-tert-ブチル-2,6-ジメチルフェニル基、

10

## 【0041】

4-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、2-エトキシフェニル基、4-n-プロポキシフェニル基、3-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、3-イソプロポキシフェニル基、2-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基、4-イソブトキシフェニル基、2-sec-ブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオキシフェニル基、4-イソペンチルオキシフェニル基、2-イソペンチルオキシフェニル基、4-ネオペンチルオキシフェニル基、2-ネペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘキシルオキシフェニル基、2-(2'-エチルブチルオキシ)フェニル基、4-n-オクチルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-n-ドデシルオキシフェニル基、4-n-テトラデシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、4-メトキシ-1-ナフチル基、4-n-ブトキシ-1-ナフチル基、5-エトキシ-1-ナフチル基、6-メトキシ-2-ナフチル基、6-エトキシ-2-ナフチル基、6-n-ブトキシ-2-ナフチル基、6-n-ヘキシルオキシ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチル基、7-n-ブトキシ-2-ナフチル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、2-メチル-5-メトキシフェニル基、3-メチル-5-メトキシフェニル基、3-エチル-5-メトキシフェニル基、2-メトキシ-4-メチルフェニル基、3-メトキシ-4-メチルフェニル基、2,4-ジメトキシフェニル基、2,5-ジメトキシフェニル基、2,6-ジメトキシフェニル基、3,4-ジメトキシフェニル基、3,5-ジメトキシフェニル基、3,5-ジエトキシフェニル基、3,5-ジ-n-ブトキシフェニル基、2-メトキシ-4-エトキシフェニル基、2-メトキシ-6-エトキシフェニル基、3,4,5-トリメトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、2-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(3'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-n-ブトキシフェニル)フェニル基、2-(2'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-クロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、4-フェノキシフェニル基、4-(1-ナフチルオキシ)フェニル基、4-(2-ナフチルオキシ)フェニル基、3-フェノキシフェニル基、2-フェニキシフェニル基、3-(1-ナフチルオキシ)フェニル基、8-フェニキシ-2-キノリニル基、4-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、4-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、2-クロロフェニル基、4-プロモフェニル基、3-プロモフェニル基、2-プロモフェニル基、4-クロロ-1-ナフチル基、4-クロロ-2-ナフチル基、6-プロモ-2-ナフチル基、2,3-ジフルオロフェニル基、2,5-ジフルオロフェニル基、2,6-ジフルオロフェニル基、3,4-ジフルオロフェニル基、3,5-ジフルオロフェニル基、2,3-ジクロロフェニル基、2,4-ジクロロフェニル基、2,5-ジクロロフェニル基、3,4-ジクロロフェニル基、3,5-ジクロロフェニル基、2,5-ジプロモフェニル基、2,4,6-トリクロロフェニ

20

30

40

50

ル基、2, 4-ジクロロ-1-ナフチル基、1, 6-ジクロロ-2-ナフチル基、2-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-フルオロ-5-メチルフェニル基、3-フルオロ-2-メチルフェニル基、3-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-メチル-4-フルオロフェニル基、2-メチル-5-フルオロフェニル基、3-メチル-4-フルオロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-5-メチルフェニル基、2-クロロ-6-メチルフェニル基、2-メチル-3-クロロフェニル基、2-メチル-3-クロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、3-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4, 6-ジメチルフェニル基、2-メトキシ-4-フルオロフェニル基、2-フルオロ-4-メトキシフェニル基、2-フルオロ-4-エトキシフェニル基、2-フルオロ-6-メトキシフェニル基、3-フルオロ-4-エトキシフェニル基、3-クロロ-4-メトキシフェニル基、2-メトキシ-5-クロロフェニル基、3-メトキシ-6-クロロフェニル基、5-クロロ-2, 4-ジメトキシフェニル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

# 【0042】

$R_1 \sim R_3$  の  $-(X)_n-Z$  基の  $Z$  の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、ベンジル基、 $\alpha$ -メチルベンジル基、 $\alpha$ -エチルベンジル基、フェネチル基、 $\alpha$ -メチルフェネチル基、 $\beta$ -メチルフェネチル基、 $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル基、 $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルフェネチル基、4-メチルフェネチル基、4-メチルベンジル基、3-メチルベンジル基、2-メチルベンジル基、4-エチルベンジル基、2-エチルベンジル基、4-イソプロピルベンジル基、4-tert-ブチルベンジル基、2-tert-ブチルベンジル基、4-tert-ペンチルベンジル基、4-シクロヘキシルベンジル基、4-n-オクチルベンジル基、4-tert-オクチルベンジル基、4-アリルベンジル基、4-ベンジルベンジル基、4-フェネチルベンジル基、4-フェニルベンジル基、4-(4'-メチルフェニル)ベンジル基、4-メトキシベンジル基、2-メトキシベンジル基、2-エトキシベンジル基、4-n-ブトキシベンジル基、4-n-ヘプチルオキシベンジル基、4-n-デシルオキシベンジル基、4-n-テトラデシルオキシベンジル基、4-n-ヘプタデシルオキシベンジル基、3, 4-ジメトキシベンジル基、4-メトキシメチルベンジル基、4-イソブトキシメチルベンジル基、4-アリルオキシベンジル基、4-ビニルオキシメチルベンジル基、4-ベンジロキシベンジル基、4-フェネチロキシベンジル基、4-フェニロキシベンジル基、3-フェニロキシベンジル基、

4-ヒドロキシベンジル基、3-ヒドロキシベンジル基、2-ヒドロキシベンジル基、4-ヒドロキシ-3-メトキシベンジル基、4-フルオロベンジル基、2-フルオロベンジル基、4-クロロベンジル基、3-クロロベンジル基、2-クロロベンジル基、3, 4-ジクロロベンジル基、2-フルフリル基、ジフェニルメチル基、1-ナフチルメチル基、2-ナフチルメチル基などのアラルキル基を挙げることができる。

# 【0043】

また、 $-(X)_n-Z$  基の  $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、好ましくは酸素原子を表す。 $-(X)_n-Z$  基の  $n$  は 0 または 1 を表す。

# 【0044】

一般式 (1) で表されるアミン化合物において、 $l$ 、 $m$  および  $n$  は 0 ~ 4 の整数を表す、 $l$ 、 $m$  および  $n$  は好ましくは 0 ~ 3 の整数を表し、より好ましくは 0 ~ 2 の整数を表す。

# 【0045】

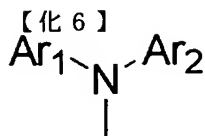
$l$ 、 $m$  および  $n$  が 2 以上の場合、 $R_1 \sim R_3$  は隣接する置換基同士で環を形成していてもよい。

# 【0046】

一般式 (1) で表されるアミン化合物において、 $A_1$  および  $A_2$  は下記一般式 (2) (化 6) で表される基を表す。

# 【0047】





(2)

【0048】

(式中、 $\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  が、互いに結合して環を形成していてもよい)

【0049】

一般式(2)で表される基において、 $\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表す。

【0050】

好ましくは、炭素原子数6～30の置換または未置換のアリール基、炭素原子数1～20の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、炭素原子数7～30の置換または未置換のアラルキル基を表し、より好ましくは、炭素原子数6～25の置換または未置換のアリール基、炭素原子数1～15の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、炭素原子数7～25の置換または未置換のアラルキル基を表す。

【0051】

$\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  の置換または未置換のアリール基の具体例としては、 $-(X)_n - Z$  基の  $Z$  の置換または未置換のアリール基の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

【0052】

$\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、 $-(X)_n - Z$  基の  $Z$  の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例として挙げた置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができる。

【0053】

$\text{Ar}_1$  および  $\text{Ar}_2$  の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、 $-(X)_n - Z$  基の  $Z$  の置換または未置換のアラルキル基の具体例として挙げた置換または未置換のアラルキル基を挙げることができる。

【0054】

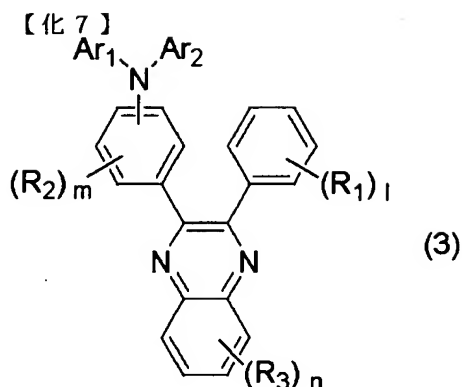
一般式(1)で表されるアミン化合物において、 $s$  および  $t$  は0～5の整数を表し、 $s + 1 \leq 5$ 、 $t + m \leq 5$ であり、 $s$  および  $t$  の少なくとも一方は1以上の整数である。好ましくは、 $s$  および  $t$  の少なくとも一方が1～3であり、より好ましくは、 $s$  および  $t$  の少なくとも一方が1～2であり、さらに好ましくは、 $s$  および  $t$  の少なくとも一方が1である。

【0055】

本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物は、多くの誘導体を包含するものであるが、その好ましい3種の形態を次に示す。

—1—：一般式(3)(化7)で表されるアミン化合物。

【0056】



10

## 【0057】

〔式中、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは  $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す）を表し、 $R_3$  はハロゲン原子、置換もしくは無置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す）を表し、 $l$ 、 $m$  および  $n$  は 0～4 の整数を表し、 $l$ 、 $m$  および  $n$  が 2 以上の場合、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖、または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  が、互いに結合して環を形成していてもよく、 $-NAr_1Ar_2$  の置換位置はベンゼン環の  $o$ -位、 $m$ -位および  $p$ -位から選ばれる任意の置換位置である〕

20

## 【0058】

－2－：一般式（1）において、 $s$  および  $t$  のどちらか一方が 0 であり、他方が 2 以上の整数であり、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す）を表し、 $R_3$  はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す）を表すアミン化合物。

30

## 【0059】

－3－：一般式（1）において、 $A_1$  および  $A_2$  が以下の条件（イ）または（ロ）を満たし、 $R_1$  および  $R_2$  は、ハロゲン原子、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す）を表し、 $R_3$  はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $-(X)n'-Z$  基（式中、 $Z$  は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $X$  は酸素原子または硫黄原子を表し、 $n'$  は 0 または 1 を表す）を表すアミン化合物。

40

## 【0060】

条件（イ）：一般式（1）において、 $s$  および  $t$  がそれぞれ 1 以上の整数である場合、 $A_1$  および  $A_2$  の少なくとも一方はキノキサリン環の結合したベンゼン環上の  $p$ -位以外の位置に結合する。

## 【0061】

50

条件(ロ)：一般式(1)において、 $s$ および $t$ がそれぞれ1以上の整数であり、 $A_1$ および $A_2$ の両方がキノキサリン環の結合したベンゼン環上の $p$ -位に位置する場合、 $A_1$ および/または $A_2$ の一般式(2)で表される基において、 $A_{r1}$ および/または $A_{r2}$ の少なくとも一方は3環以上の縮合炭化水素基を表す。

【0062】

上記の-1-~-3-の好ましい形態のアミン化合物は何れも、有機電界発光素子用の材料として好適に使用可能である。

【0063】

尚、-2-の形態において、好ましくは、 $s$ および $t$ のどちらか一方が0であり、他方が2又は3の整数であり、より好ましくは、 $s$ および $t$ のどちらか一方が0であり、他方が2である。 10

【0064】

また、-3-の形態において、条件(イ)における、 $A_1$ および $A_2$ の好ましい置換位置は、 $m$ -位および/または $o$ -位であり、その組み合わせとしては、 $A_1$ および $A_2$ が $m$ -位に置換した状態、 $A_1$ が $m$ -位であり、 $A_2$ が $o$ -位に置換した状態、あるいは $A_1$ および $A_2$ が $o$ -位に置換した状態の3種の群から選ばれる組み合わせがあるが、好ましくは、 $A_1$ および $A_2$ が $m$ -位に置換した状態、もしくは、 $A_1$ が $m$ -位であり、 $A_2$ が $o$ -位に置換した状態であり、より好ましくは、 $A_1$ および $A_2$ が $m$ -位に置換した状態である。

【0065】

-3-の形態において、条件(ロ)における $A_{r1}$ および/または $A_{r2}$ の3環以上の縮合炭化水素基としては、たとえば、 $R_1 \sim R_3$ の-(X) $n'$ -Z基のZである置換または未置換のアリール基の具体例に挙げたアリール基で示した3環以上の縮合炭化水素基を挙げることができるが、好ましくは、置換または未置換のアントラセニル基、置換または未置換のフェントリル基、あるいは置換または未置換のピレニル基を挙げることができ、より好ましくは、置換または未置換のアントラセニル基、あるいは置換または未置換のフェナントレニル基を挙げることが出来る。 20

【0066】

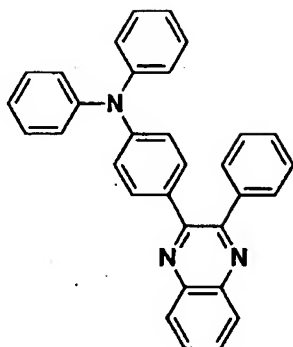
本発明に係る一般式(1)で表されるアミン化合物の具体例としては、例えば、以下に示す化合物を挙げることができるが(化8)~(化32)、本発明はこれらに限定されるものではない。 30

【0067】

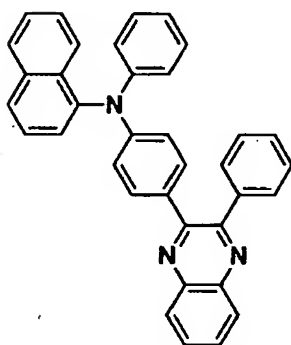
## 【化 8】

例示化合物

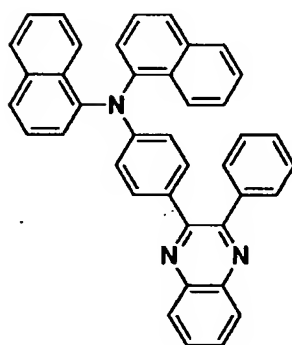
A-1



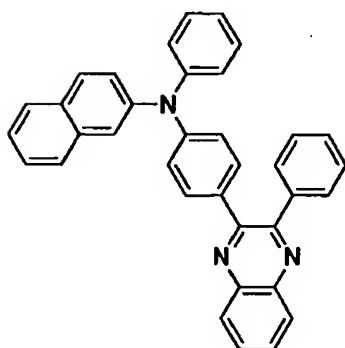
A-2



A-3

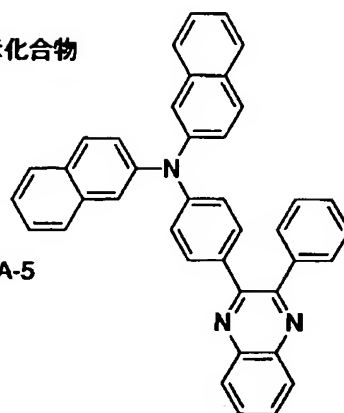


A-4



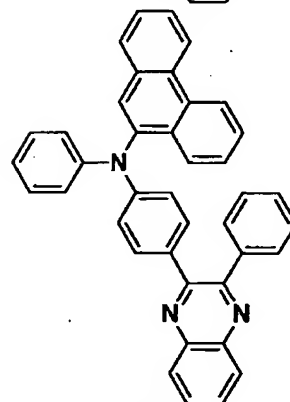
例示化合物

A-5



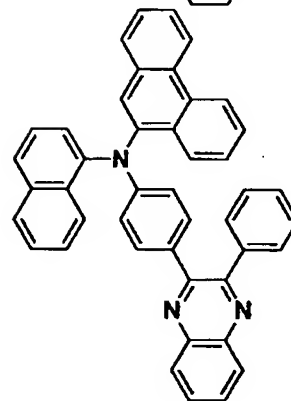
10

A-6



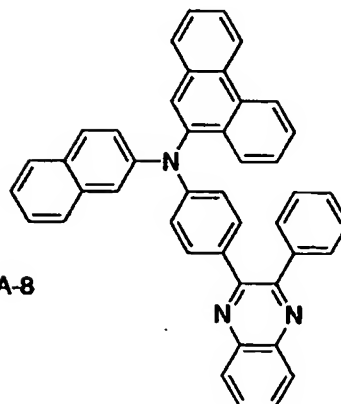
20

A-7



30

A-8

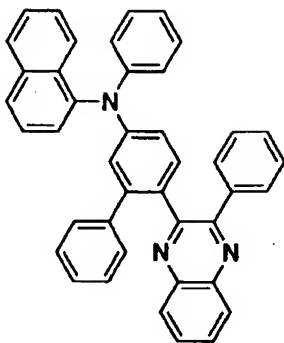


40

## 【化 9】

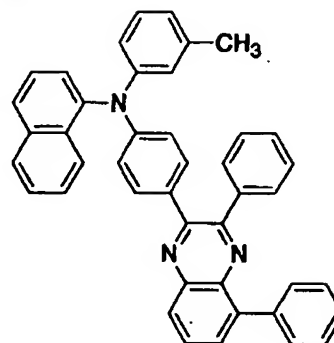
## 例示化合物

A-9



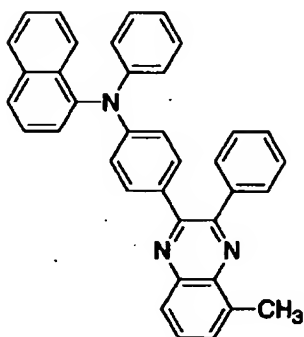
## 例示化合物

A-13

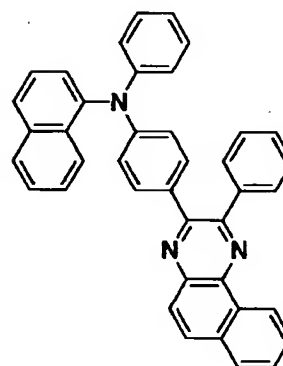


10

A-10

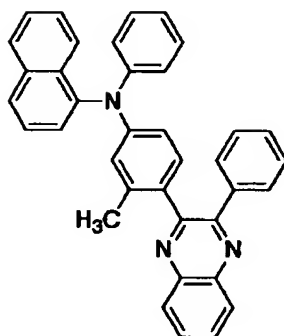


A-14

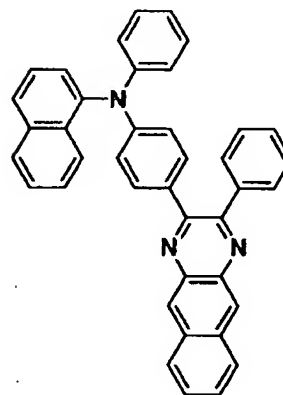


20

A-11

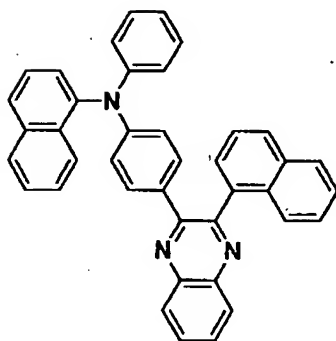


A-15

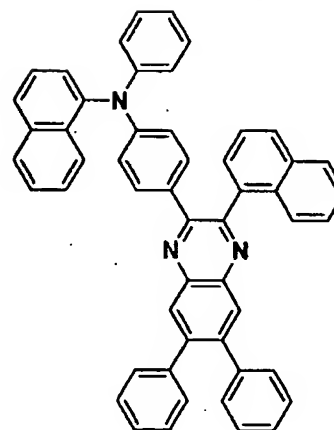


30

A-12



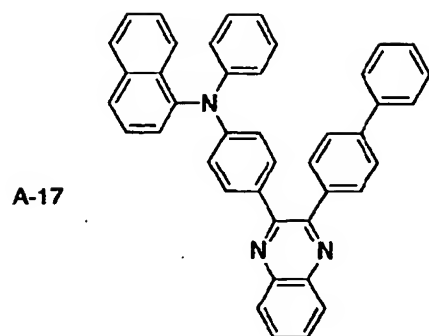
A-16



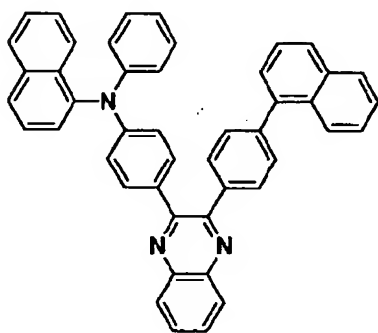
40

【化 10】

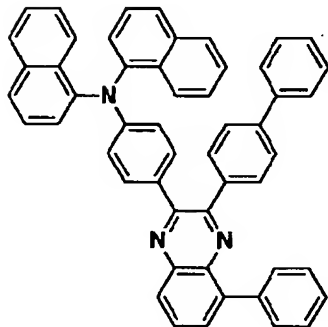
例示化合物



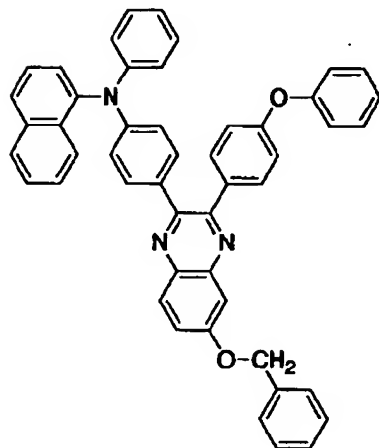
A-18



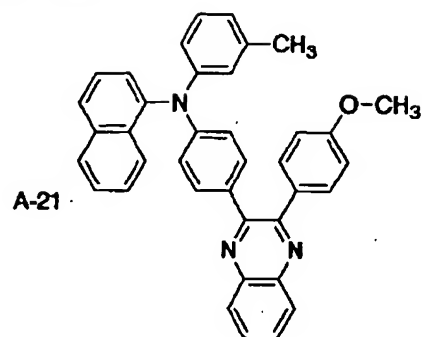
A-19



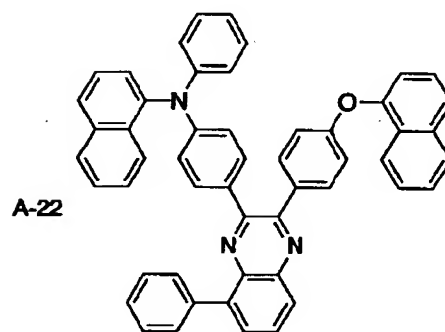
A-20



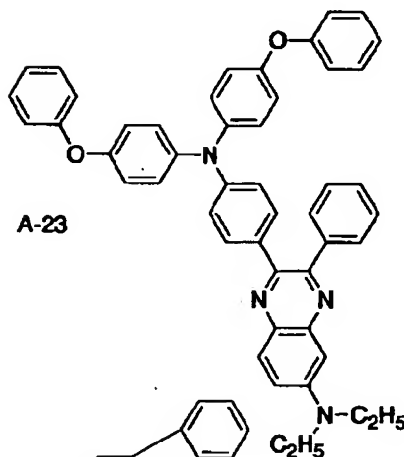
例示化合物



10

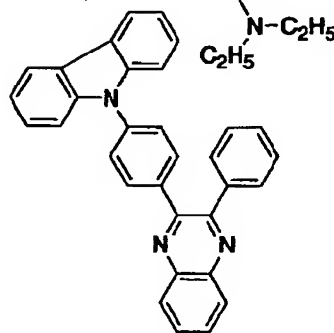


20



30

A-24



40

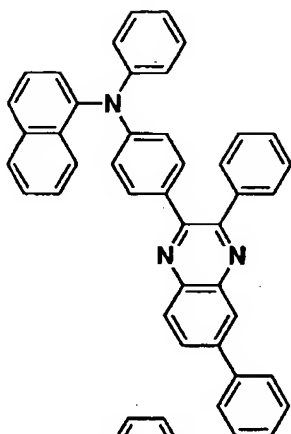
【0070】

50

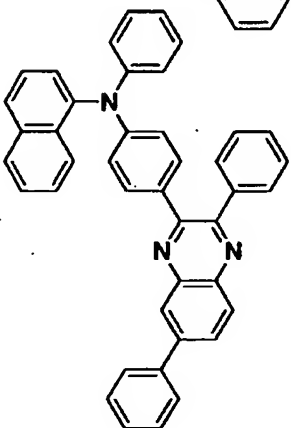
【化 1 1】

例示化合物

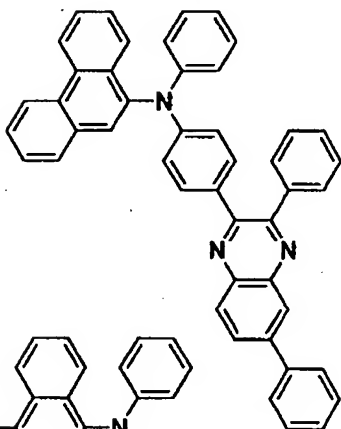
A-25



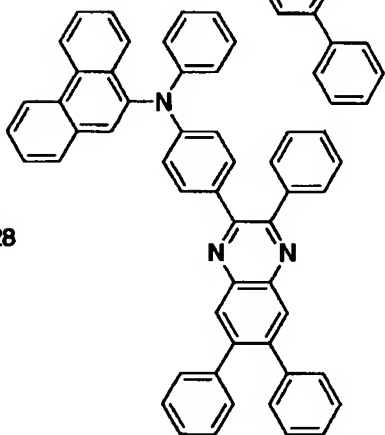
A-26



A-27

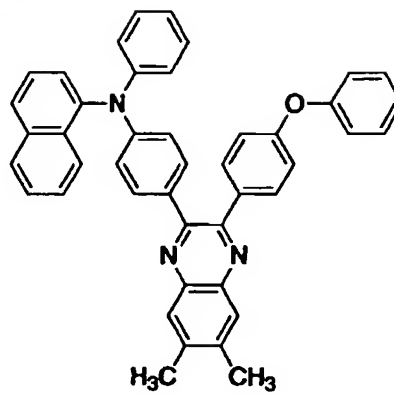


A-28



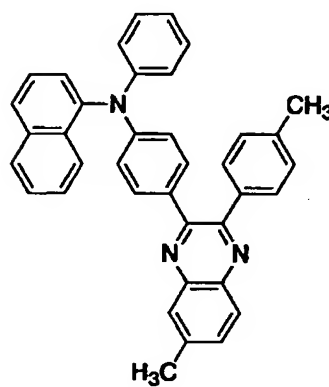
例示化合物

A-29



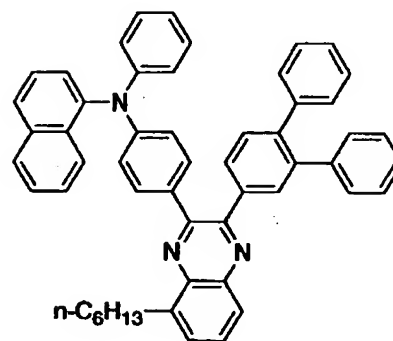
10

A-30



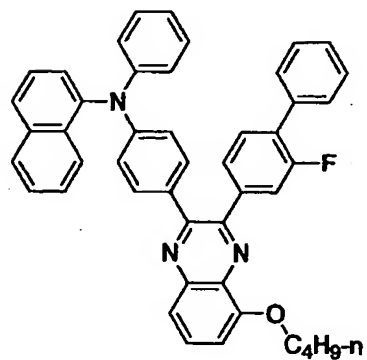
20

A-31



30

A-32



40

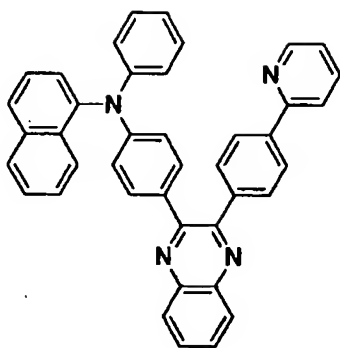
【 0 0 7 1 】

50

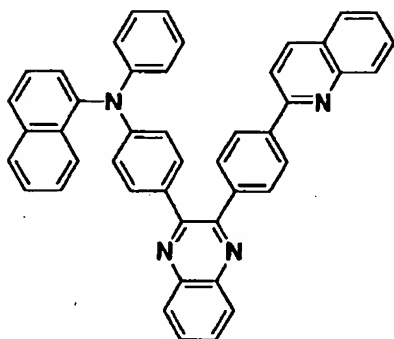
【化 1 2】

例示化合物

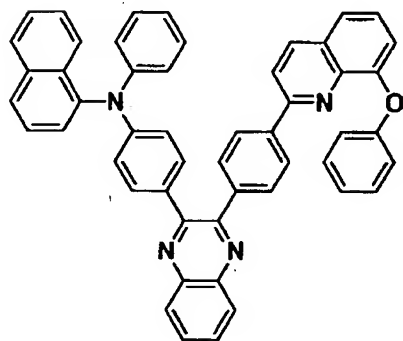
A-33



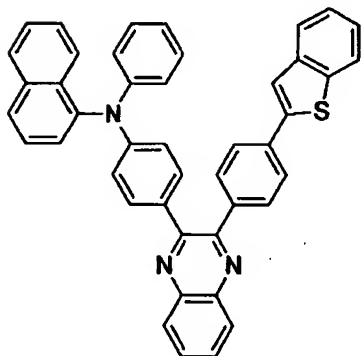
A-34



A-35

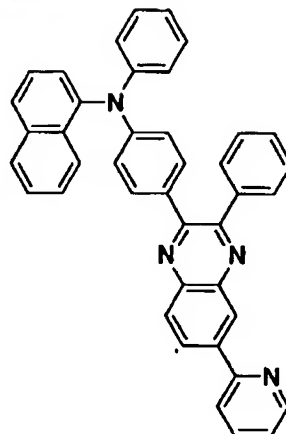


A-36

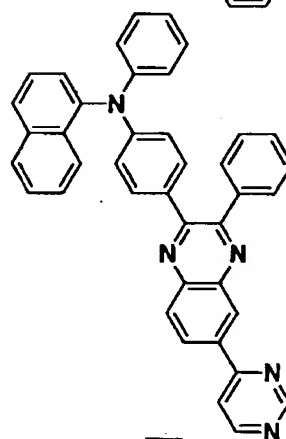


例示化合物

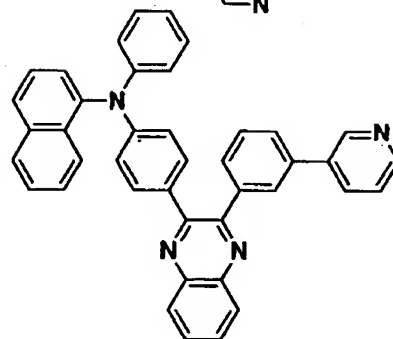
A-37



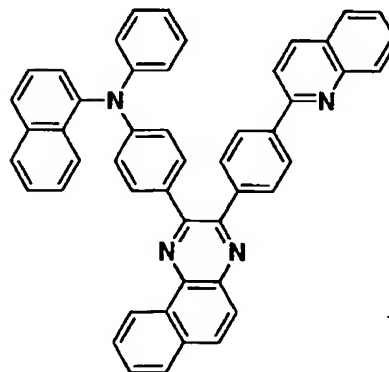
A-38



A-39



A-40



【 0 0 7 2 】

10

20

30

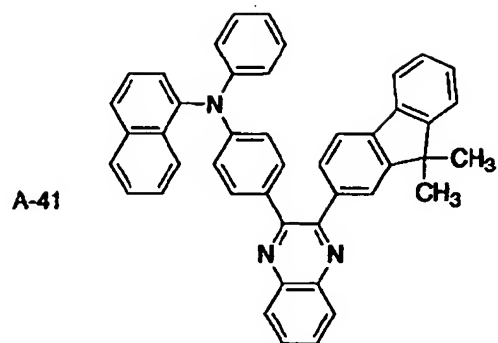
40

50

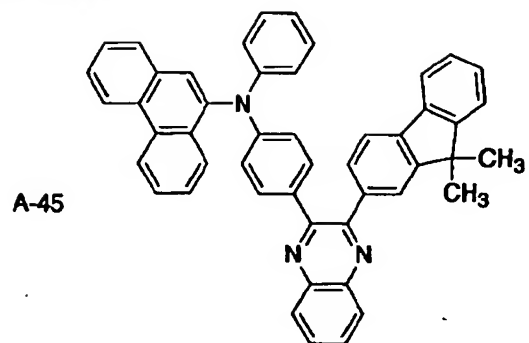


【化 1 3】

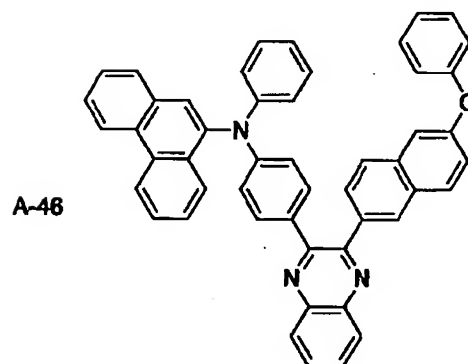
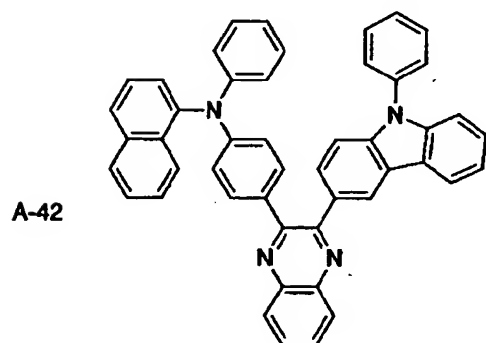
例示化合物



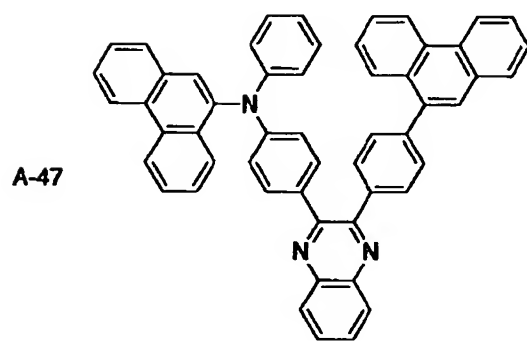
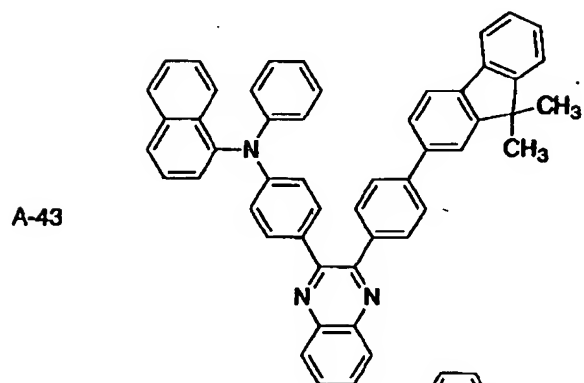
例示化合物



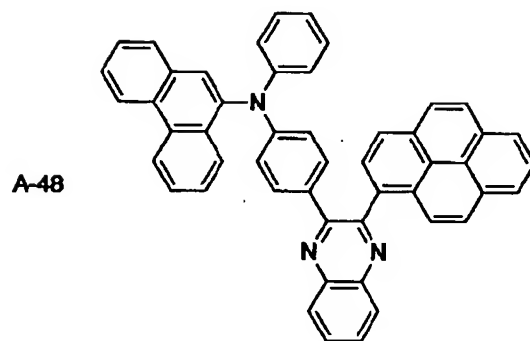
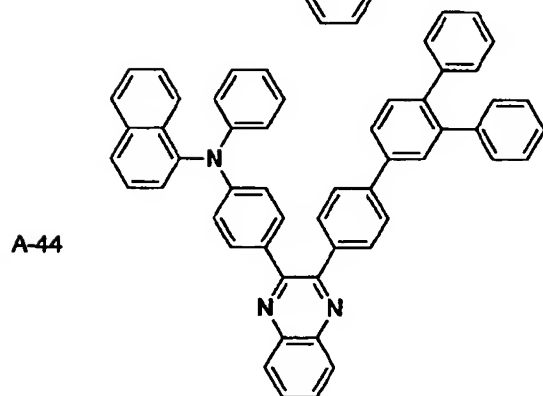
10



20



30

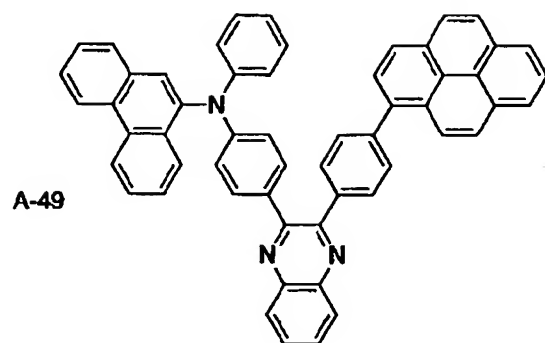


40

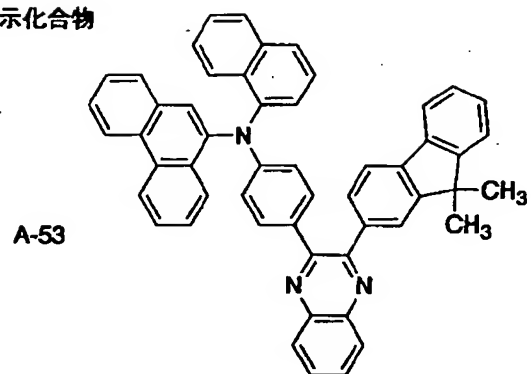
【0073】

## 【化 1 4】

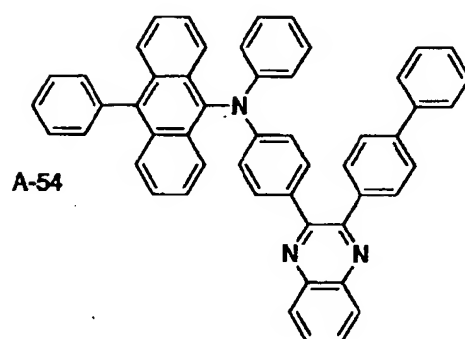
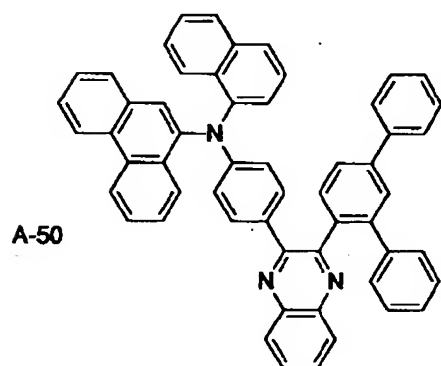
例示化合物



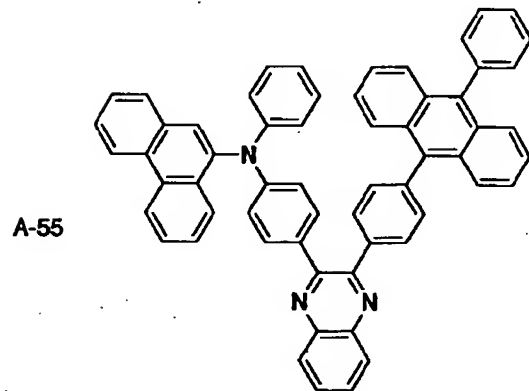
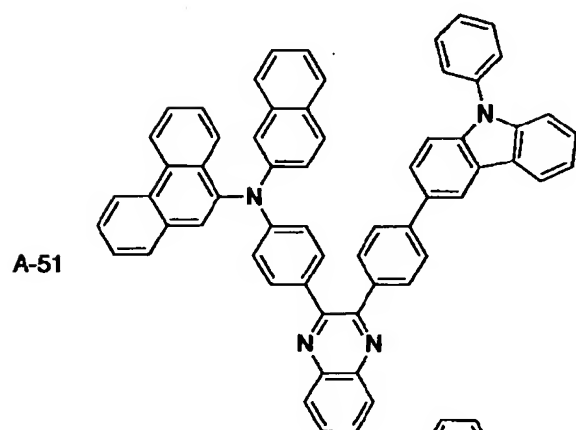
例示化合物



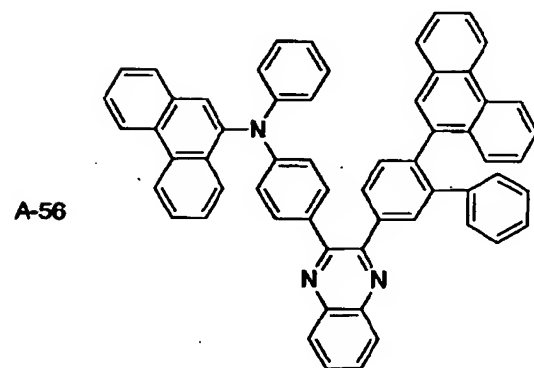
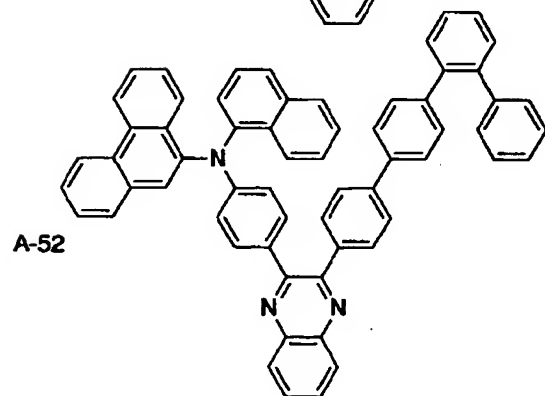
10



20



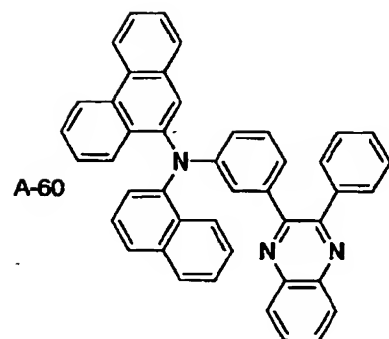
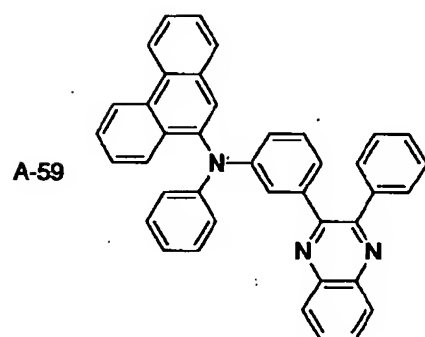
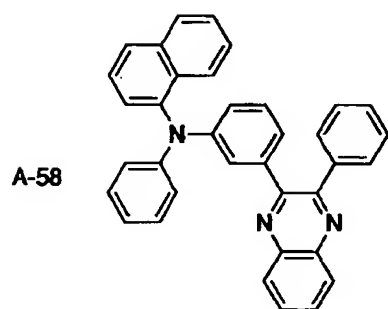
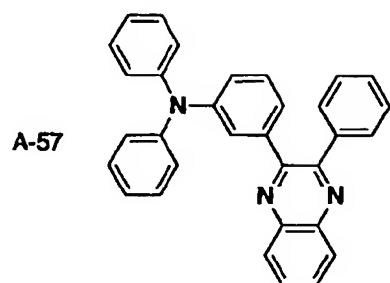
30



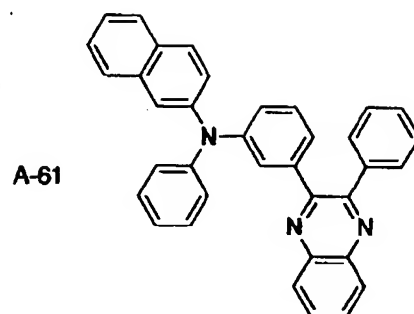
40

【化 1 5】

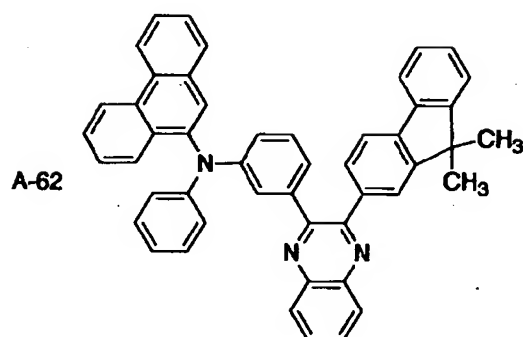
例示化合物



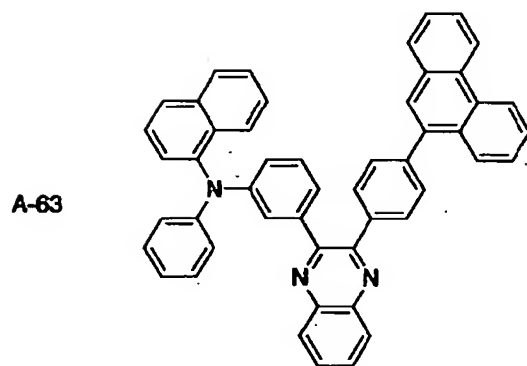
例示化合物



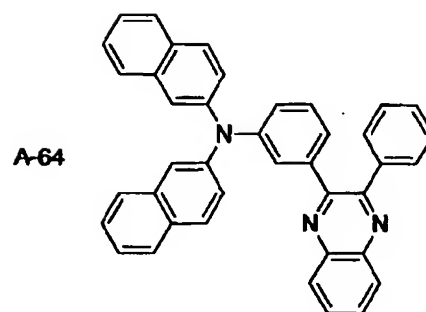
10



20



30

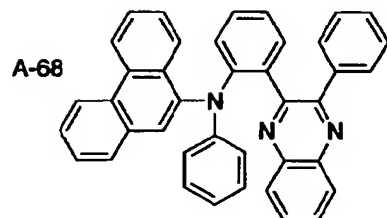
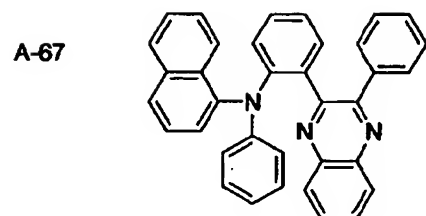
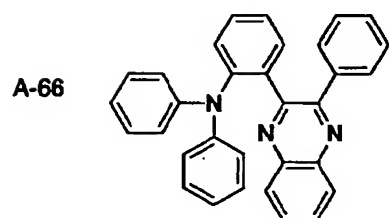
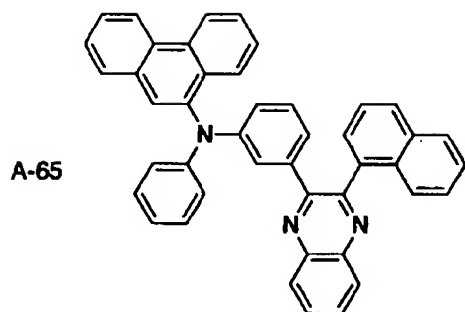


40

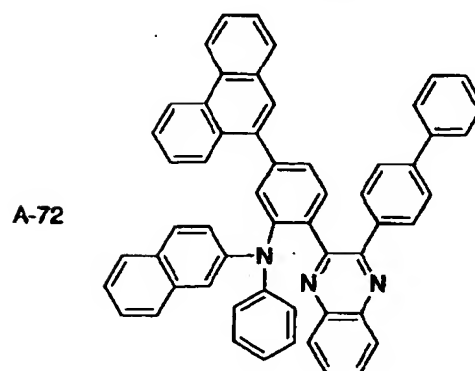
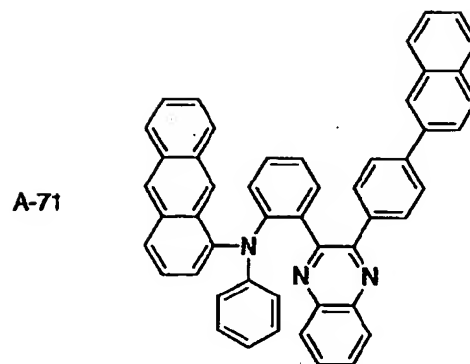
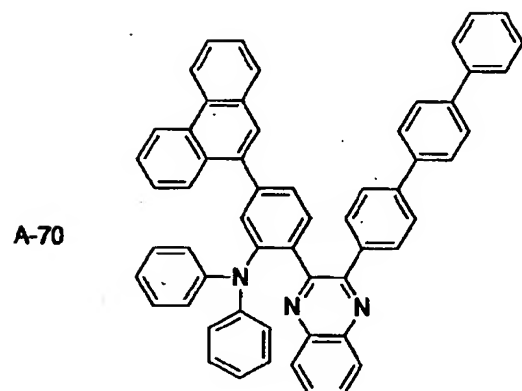
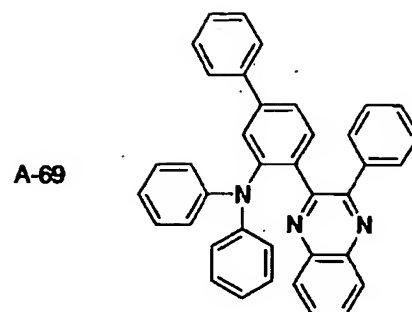
【0075】

【化 1 6】

例示化合物



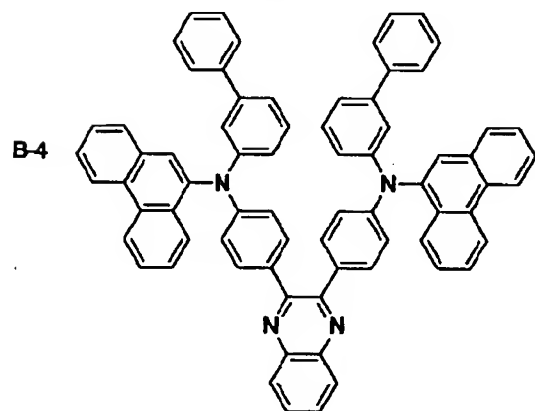
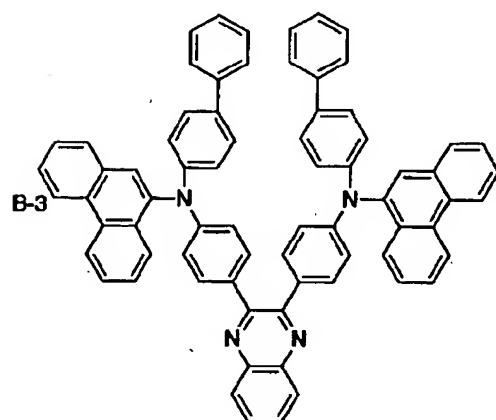
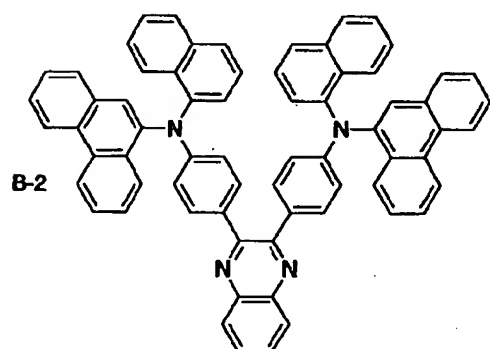
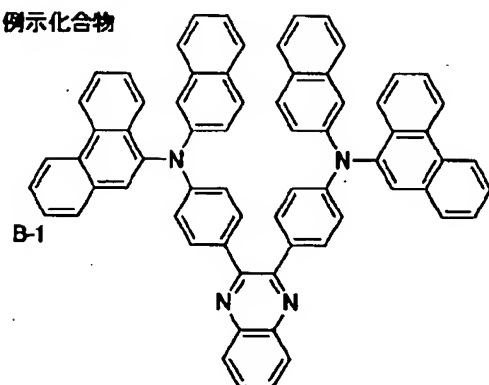
例示化合物



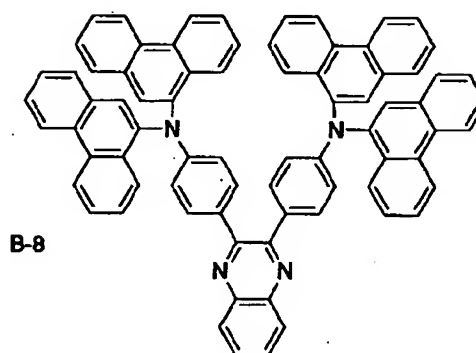
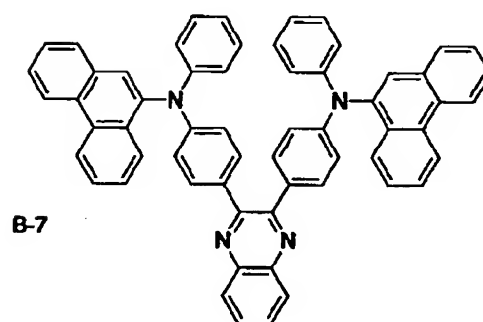
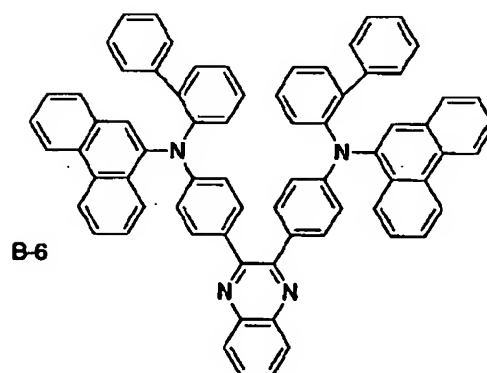
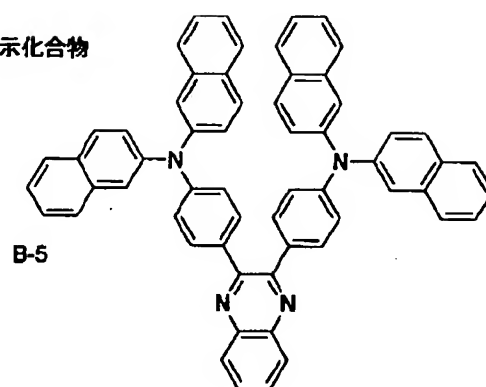
【0076】

## 【化 1 7】

例示化合物

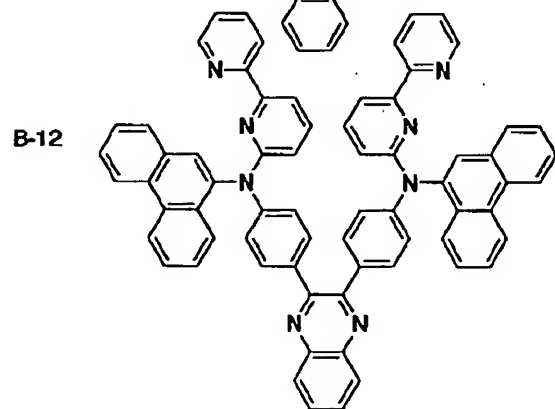
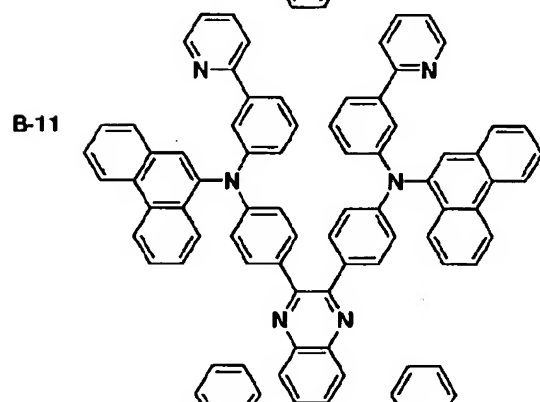
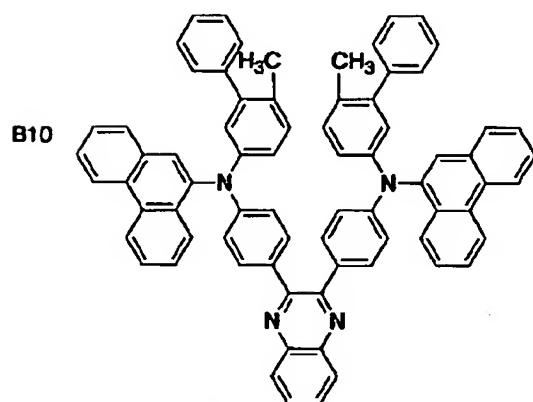
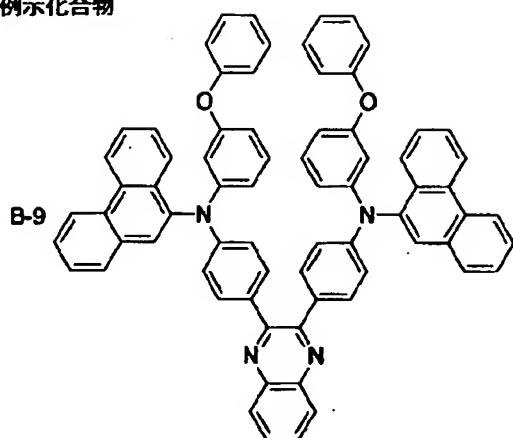


例示化合物

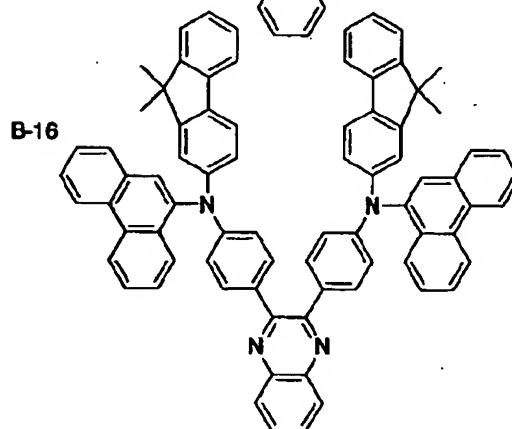
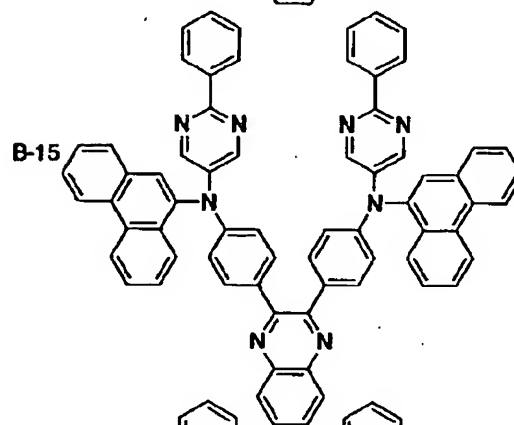
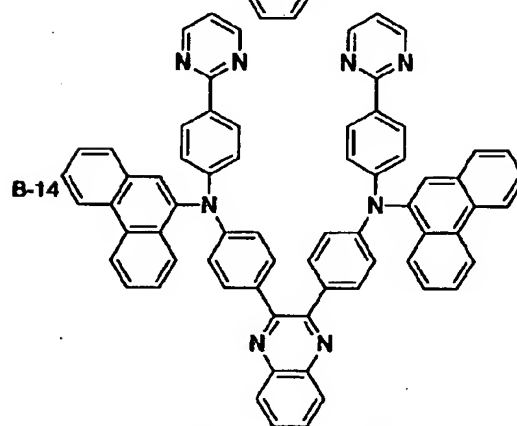
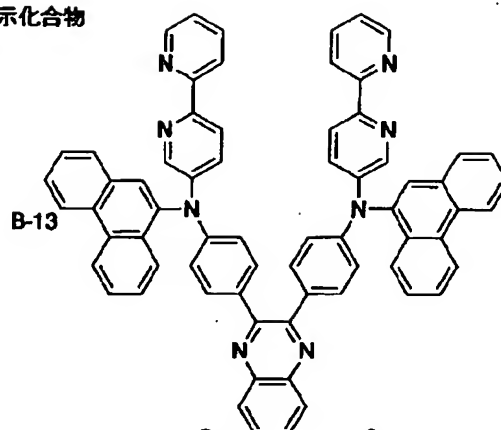


【化 1 8】

例示化合物



例示化合物



【 0 0 7 8 】

10

20

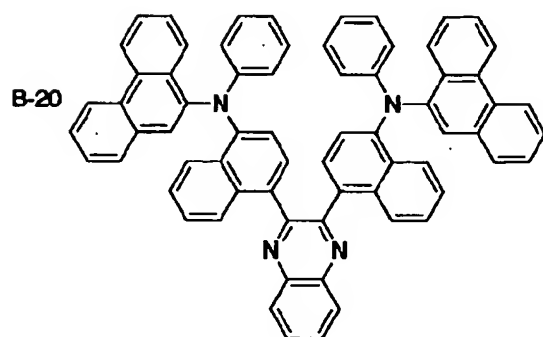
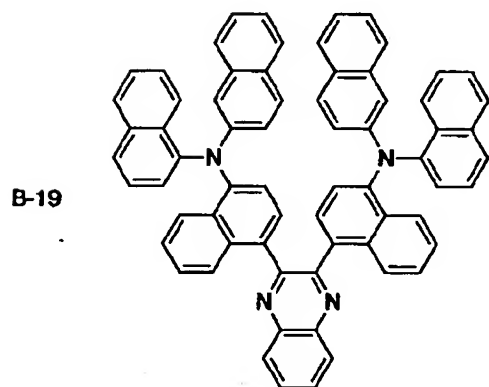
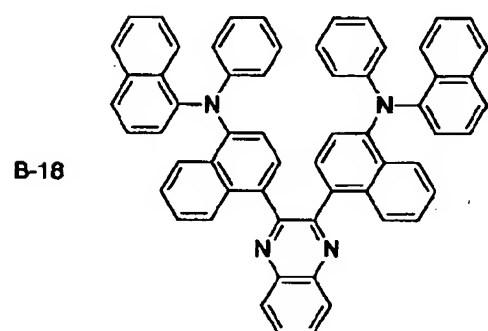
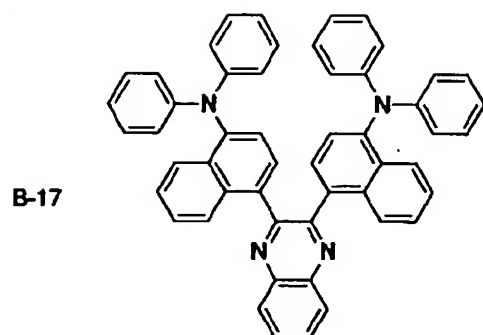
30

40

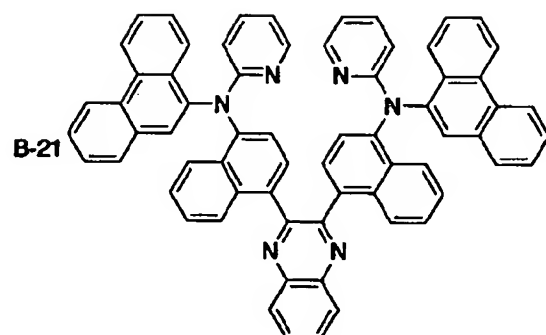
50

【化 1 9】

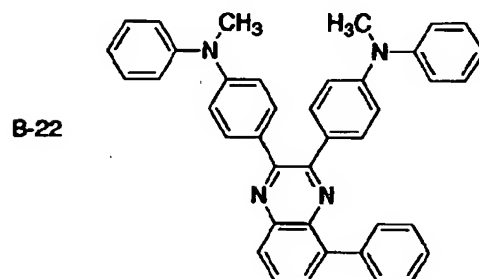
例示化合物



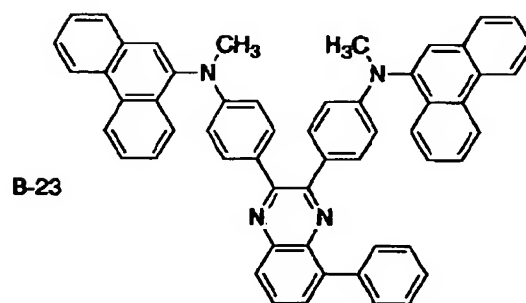
例示化合物



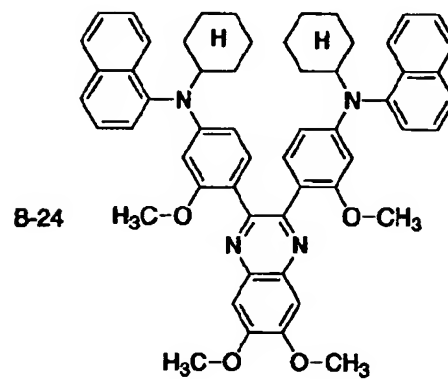
10



20



30



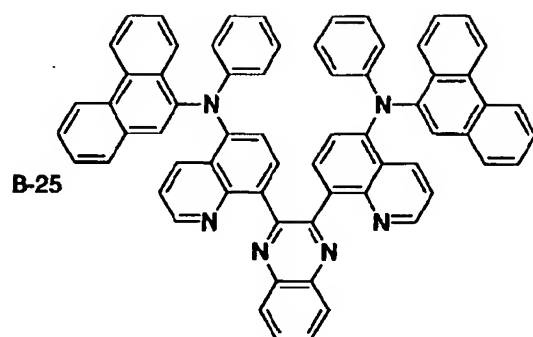
40

【 0 0 7 9 】

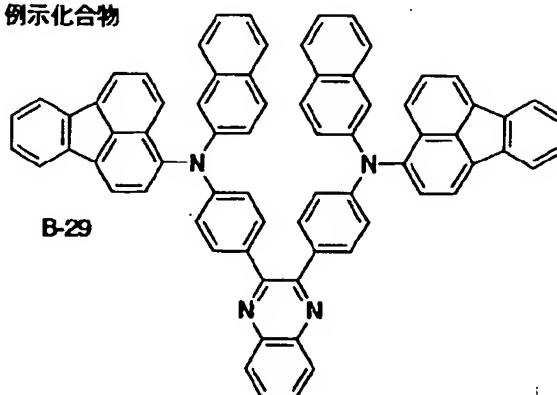
50

【化 20】

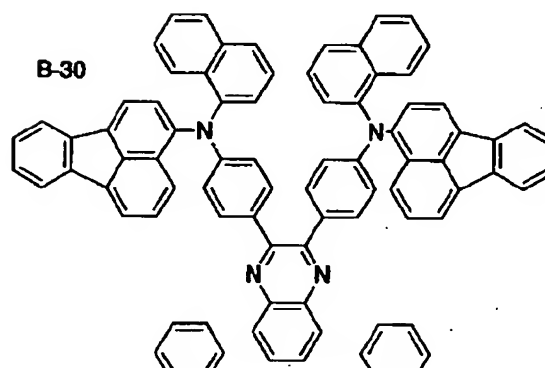
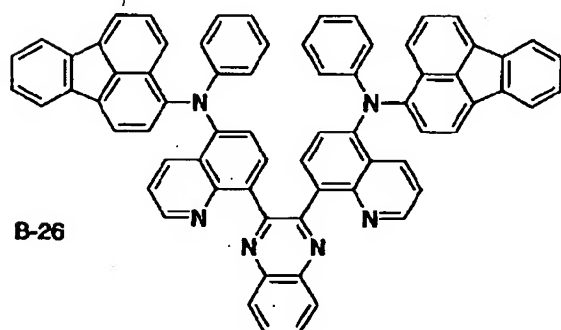
例示化合物



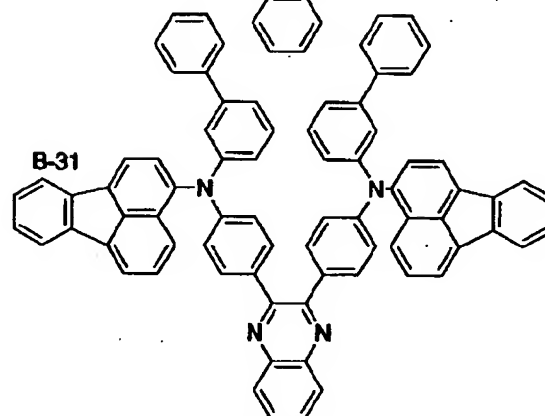
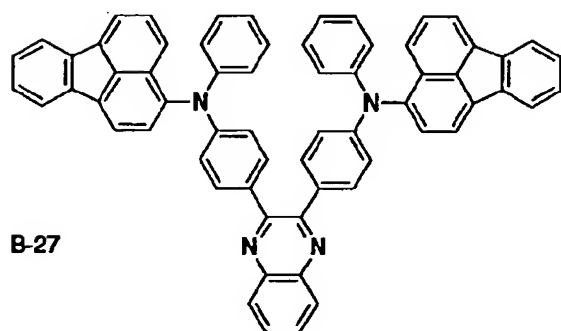
例示化合物



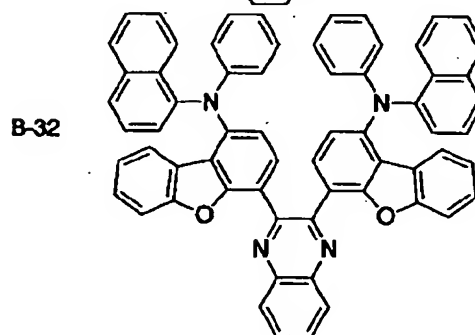
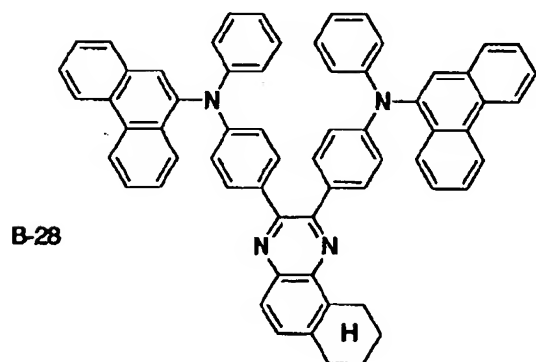
10



20



30



40

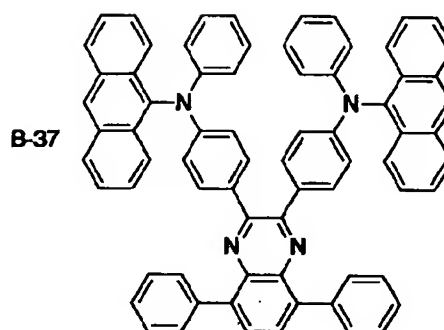
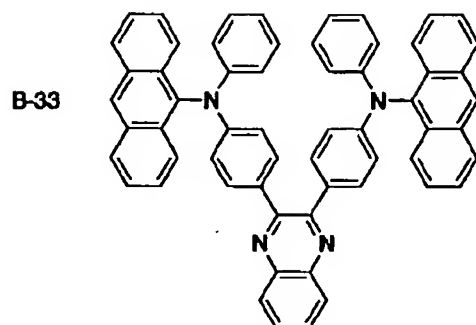
【0080】



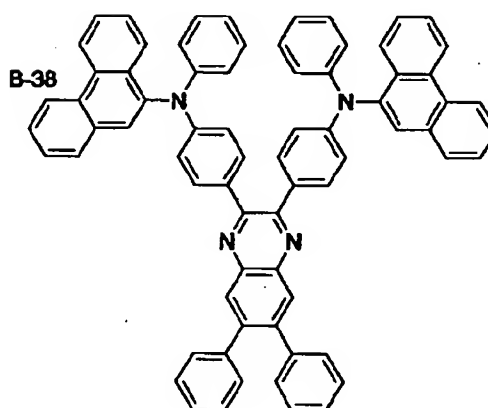
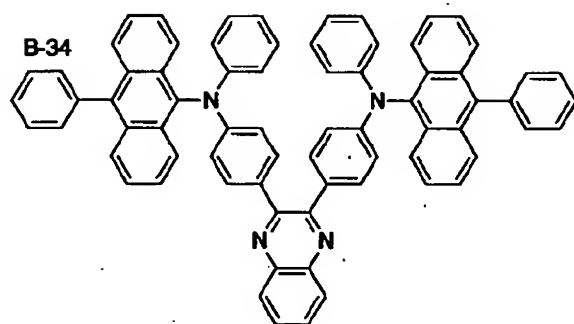
【化 2 1】

例示化合物

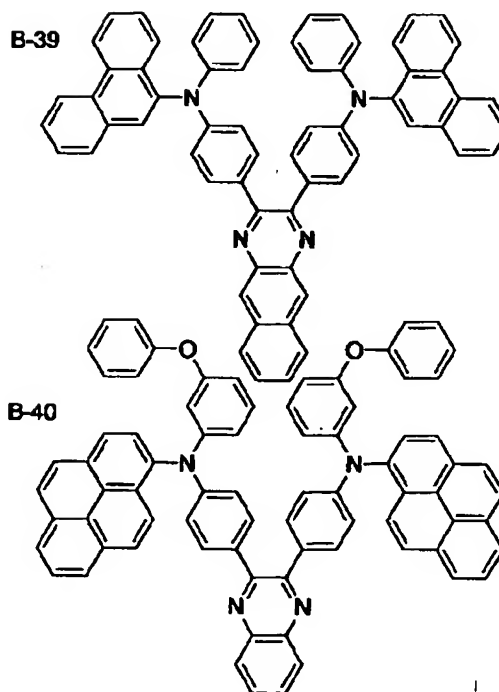
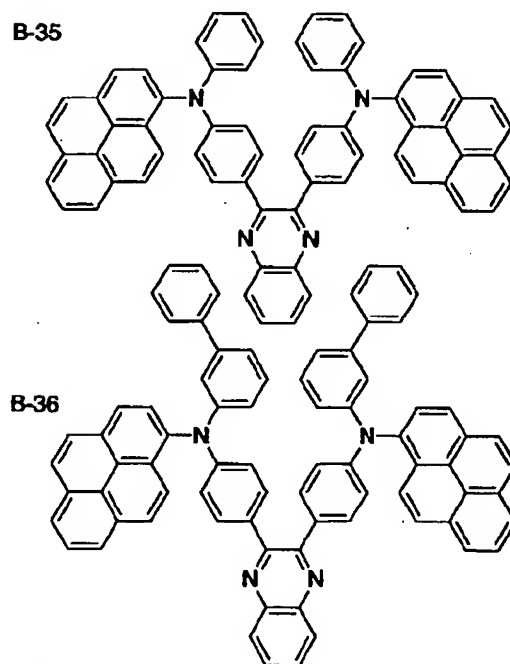
例示化合物



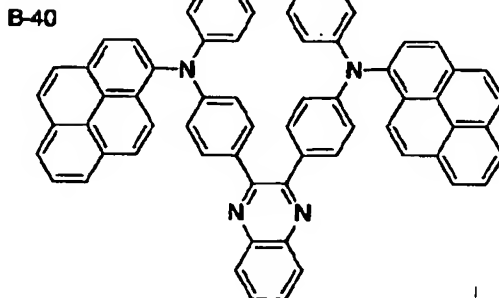
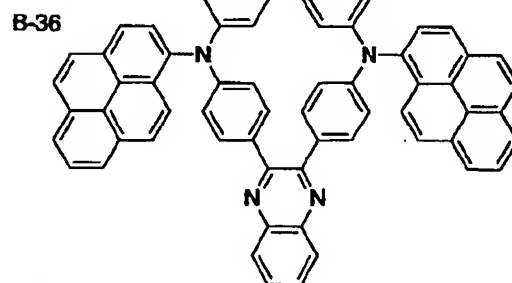
10



20



30



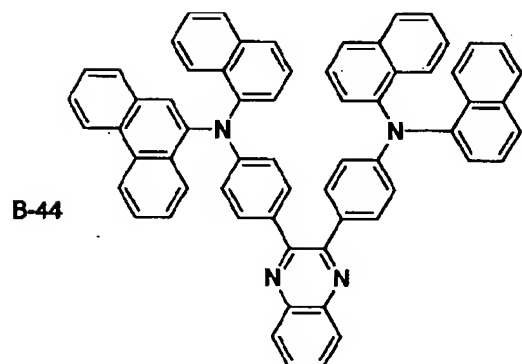
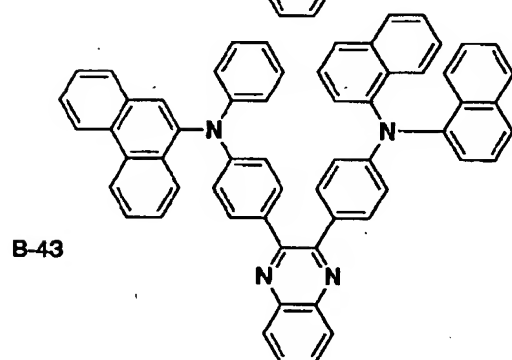
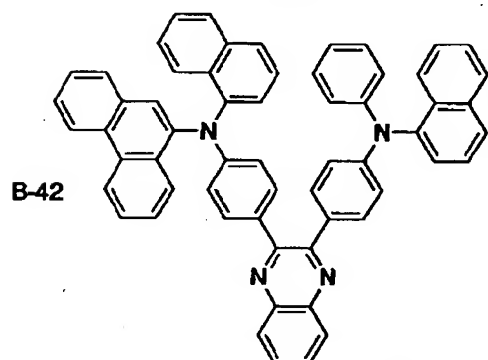
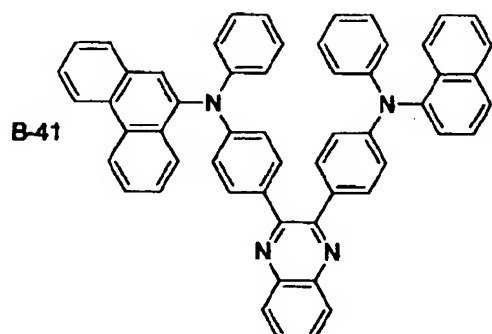
40

【 0 0 8 1 】

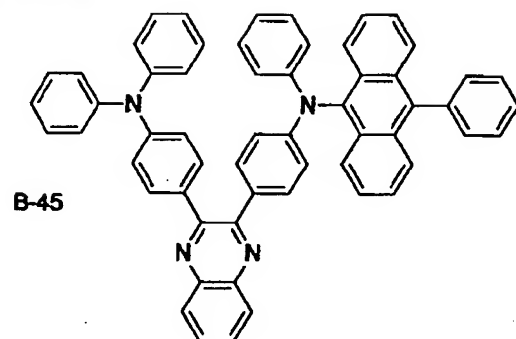
50

【化 2 2】

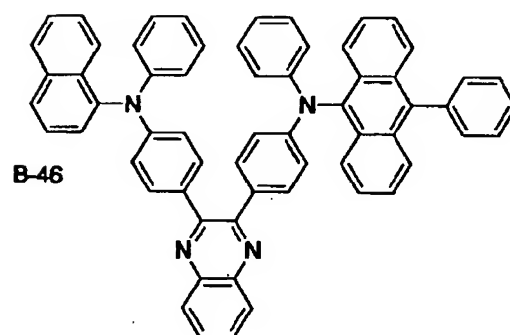
例示化合物



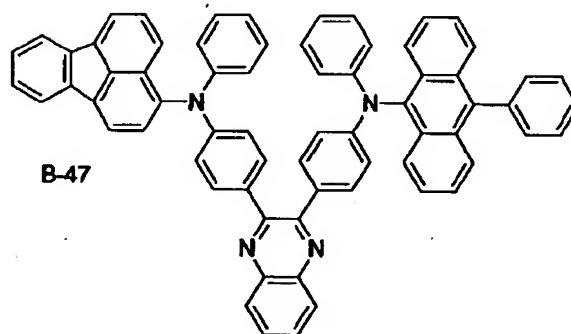
例示化合物



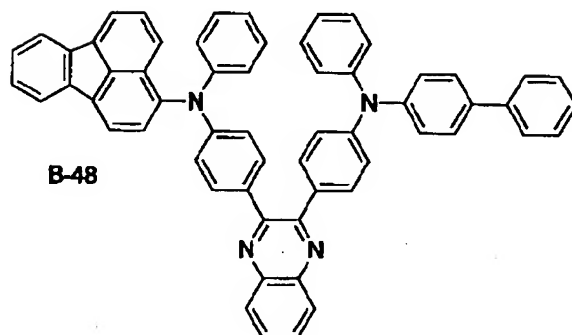
10



20



30

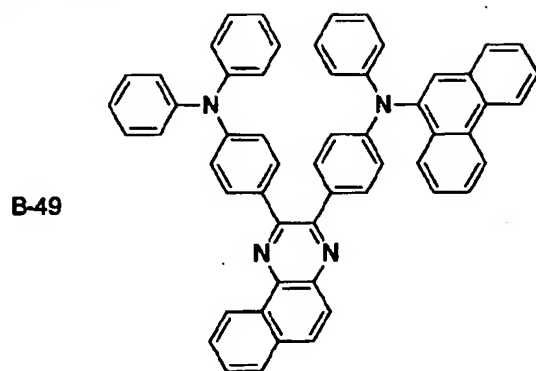


40

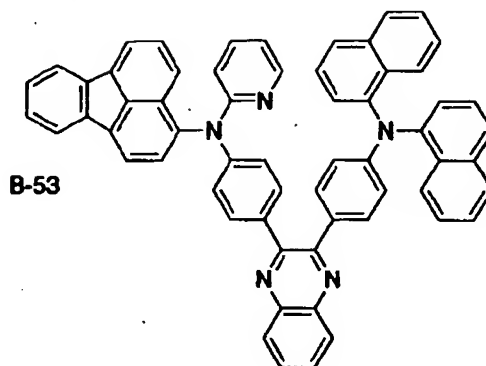
【0082】

## 【化 2 3】

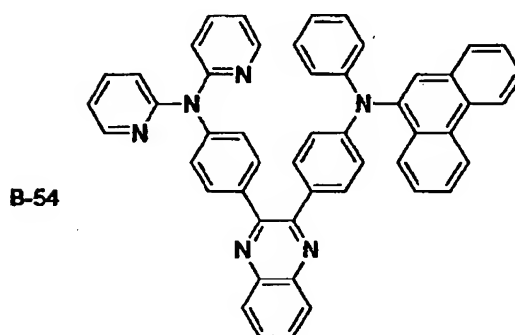
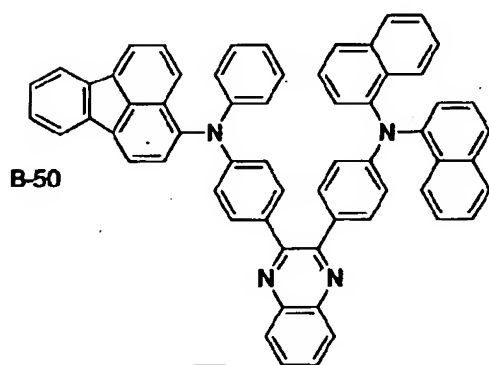
例示化合物



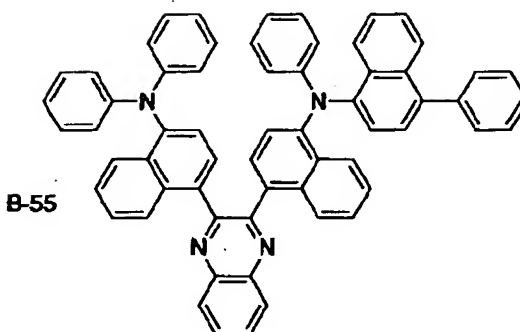
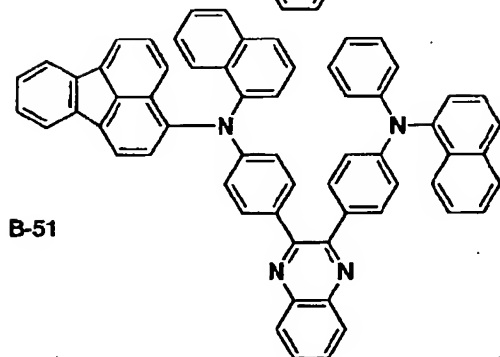
例示化合物



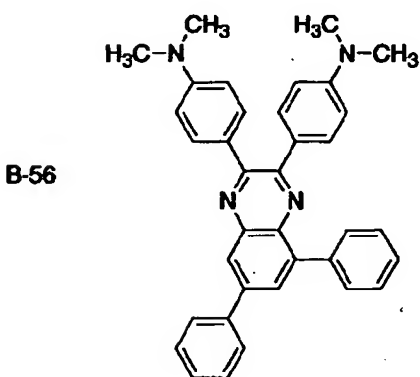
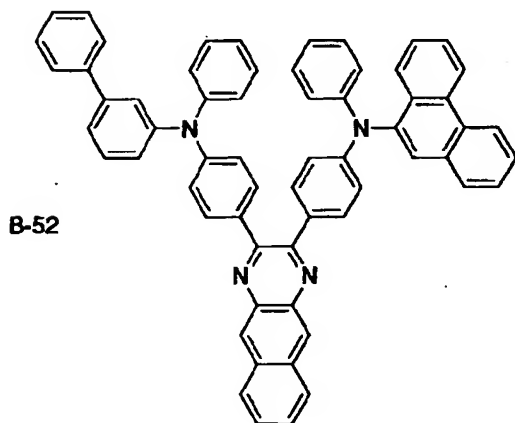
10



20



30

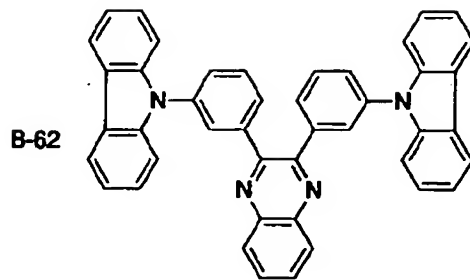
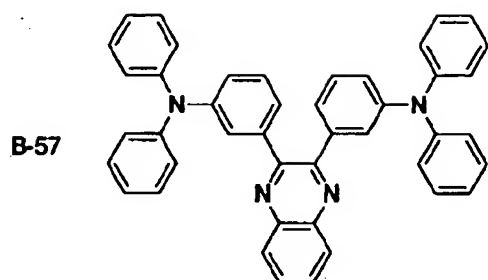


40

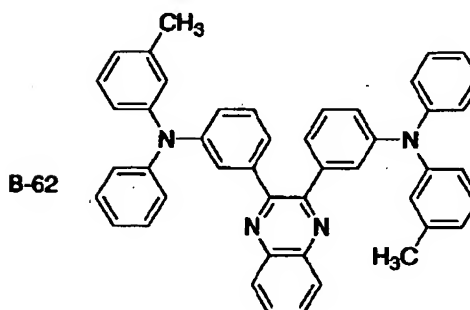
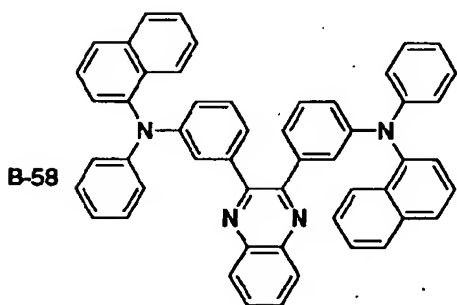
【化 2 4】

例示化合物

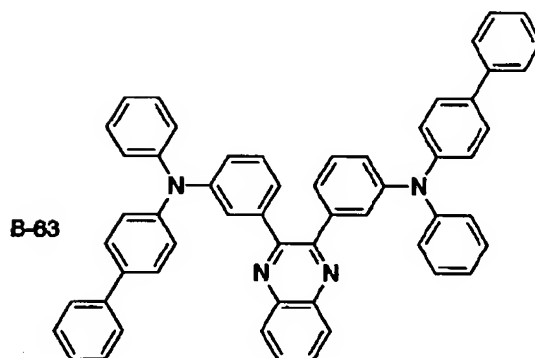
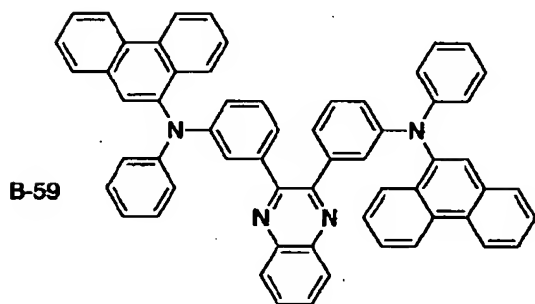
例示化合物



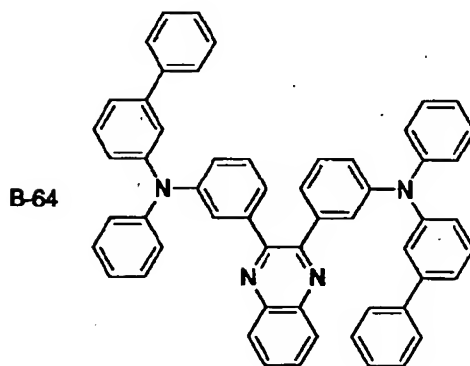
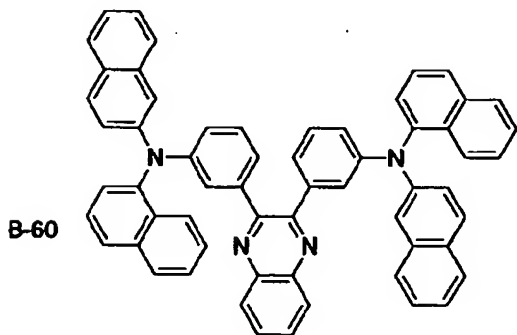
10



20



30



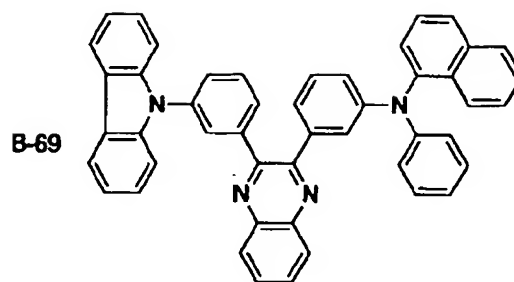
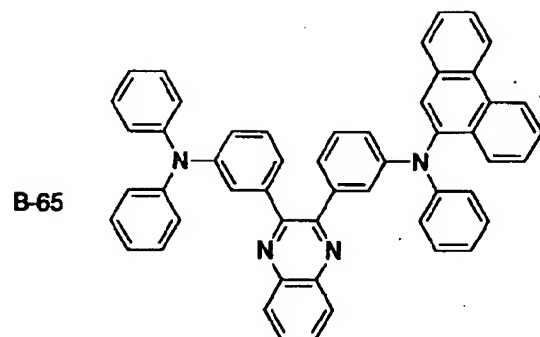
40

【0084】

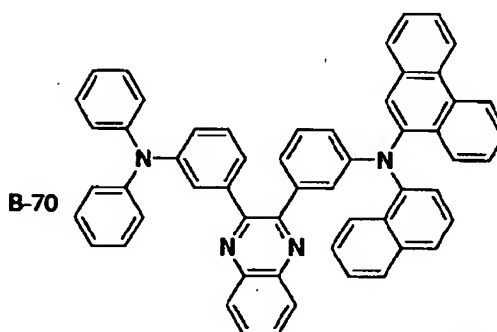
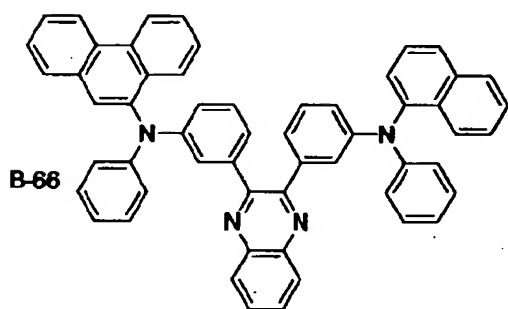
【化 2 5】

例示化合物

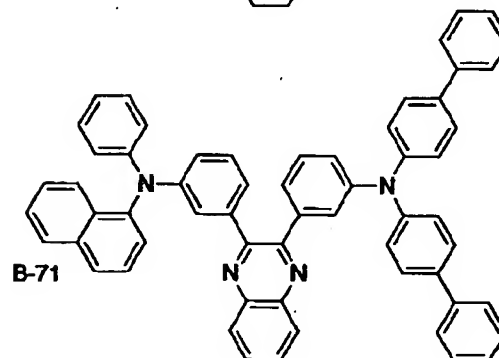
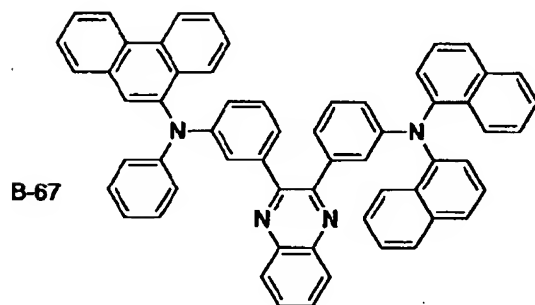
例示化合物



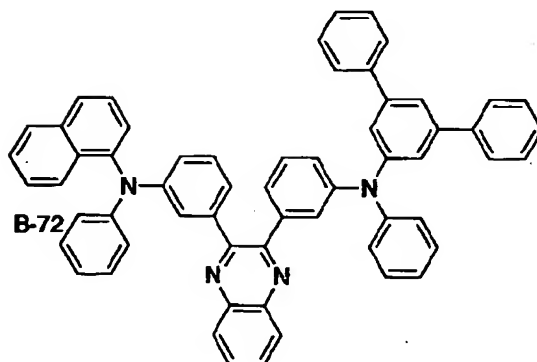
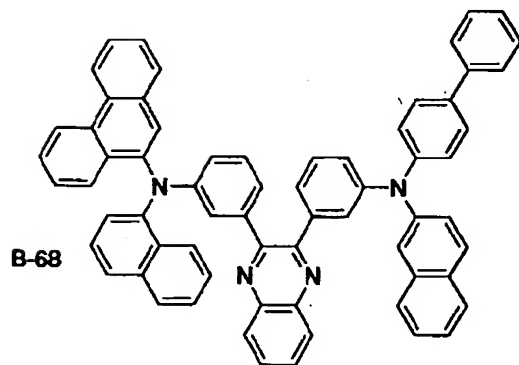
10



20



30



40

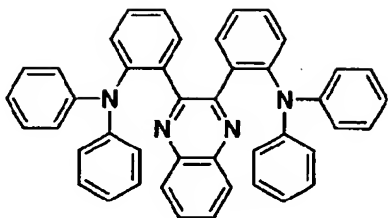
【 0 0 8 5】

【化 2 6】

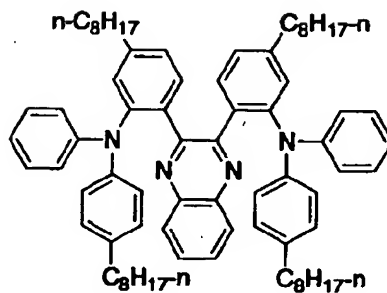
例示化合物

例示化合物

B-73

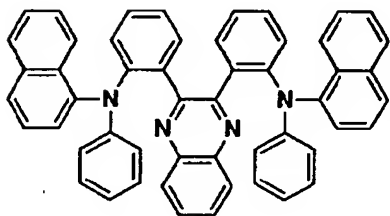


B-77

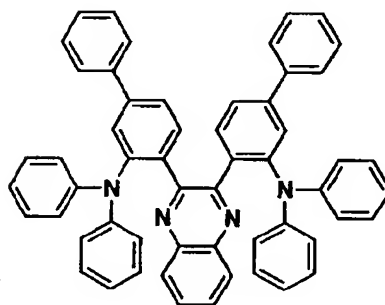


10

B-74

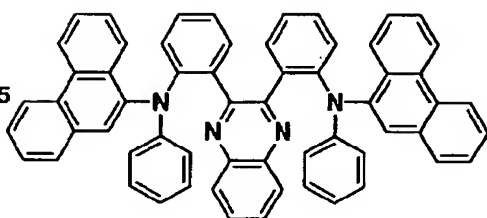


B-78

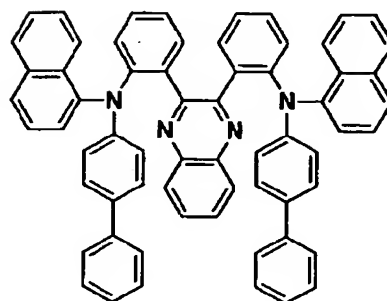


20

B-75

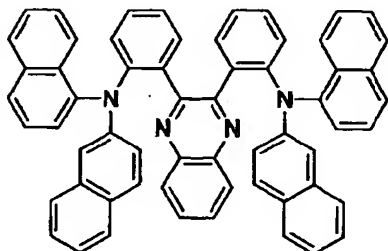


B-79

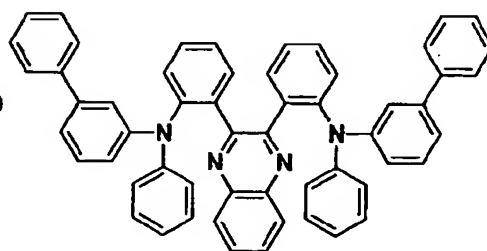


30

B-76



B-80



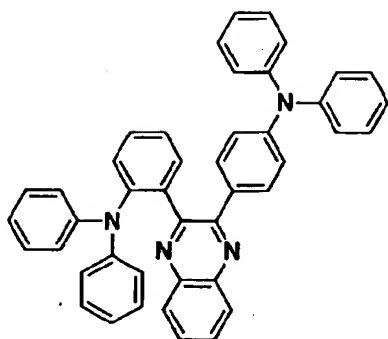
40

【 0 0 8 6 】

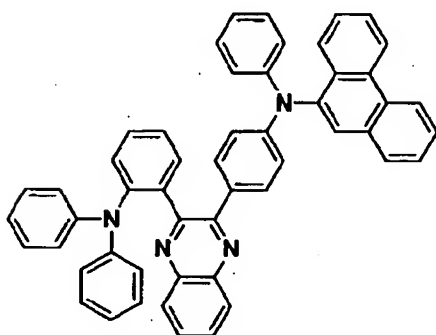
【化 27】

例示化合物

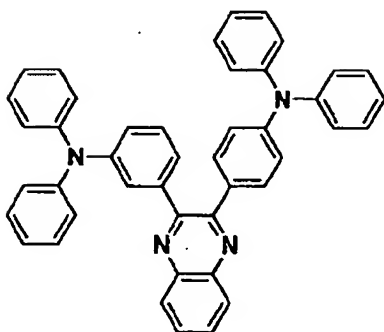
B-81



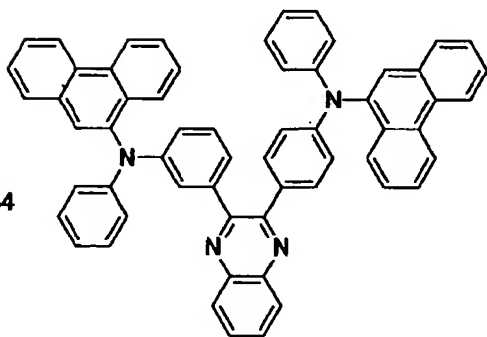
B-82



B-83

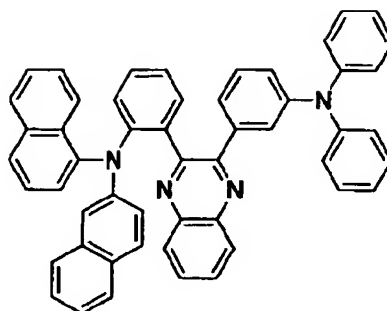


B-84



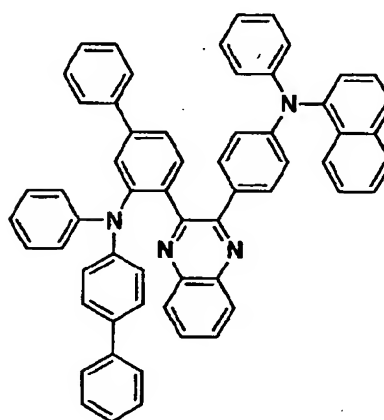
例示化合物

B-85



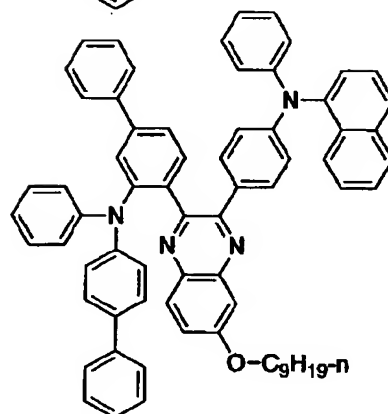
10

B-86



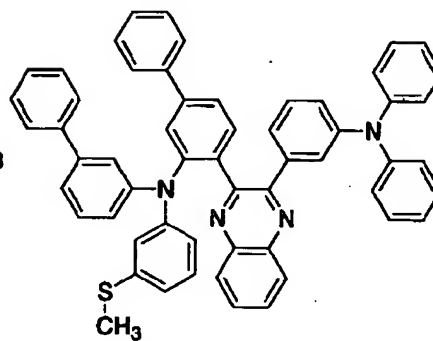
20

B-87



30

B-88



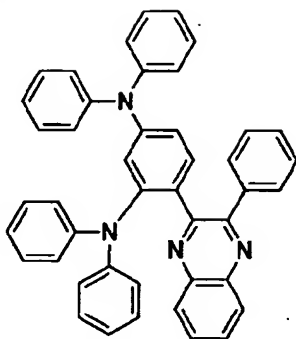
40

【0087】

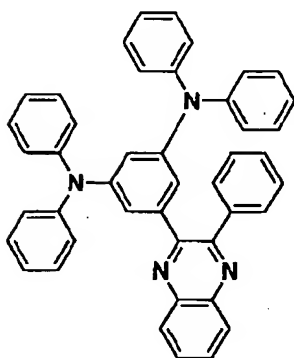
【化 2 8】

例示化合物

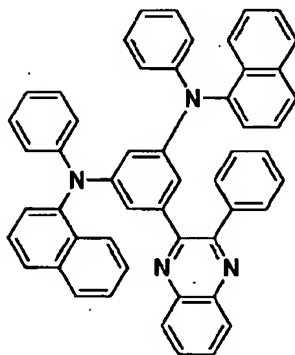
C-1



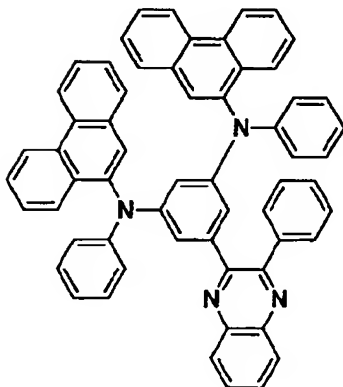
C-2



C-3

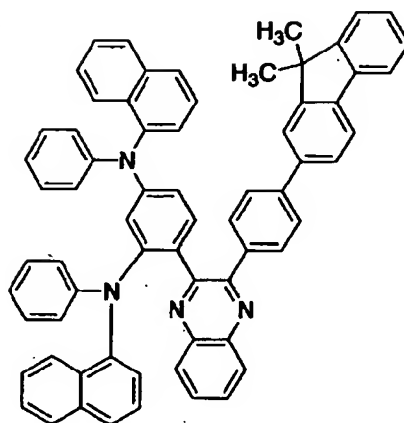


C-4



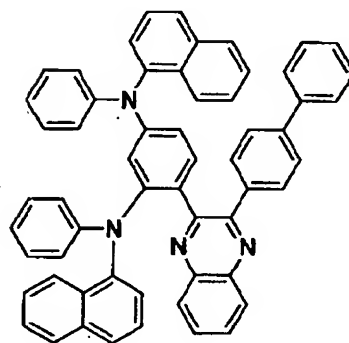
例示化合物

C-5



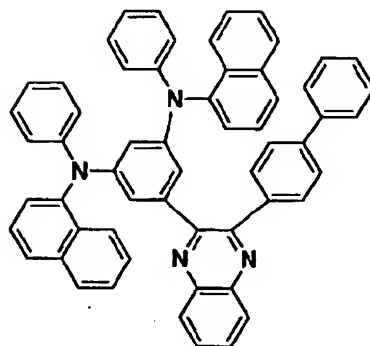
10

C-6



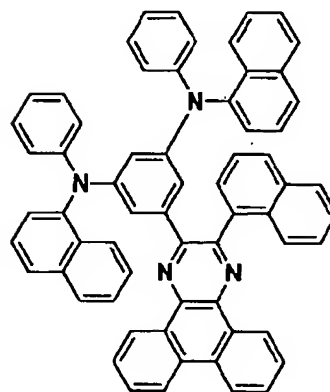
20

C-7



30

C-8



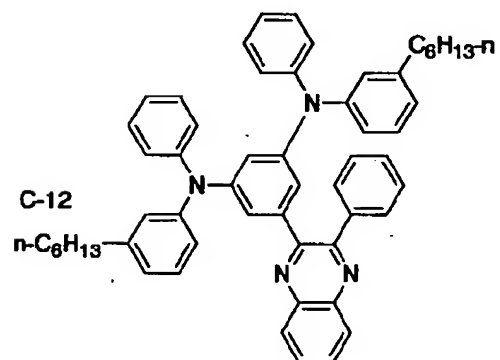
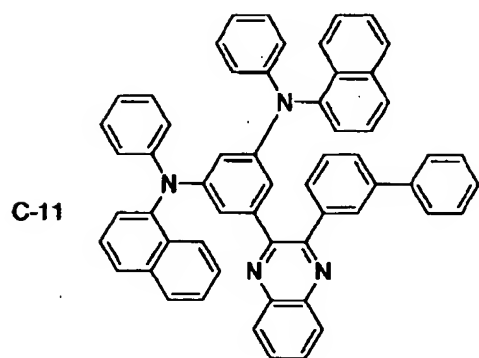
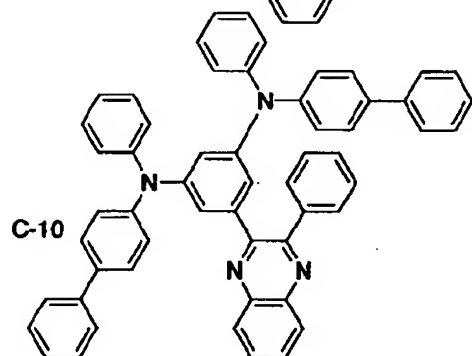
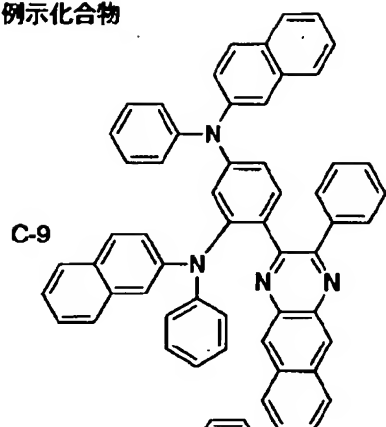
40

【 0 0 8 8 】

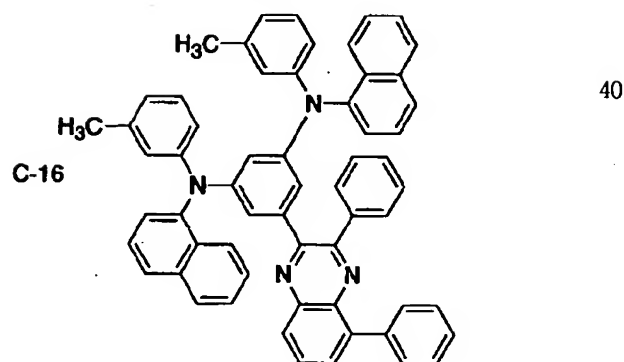
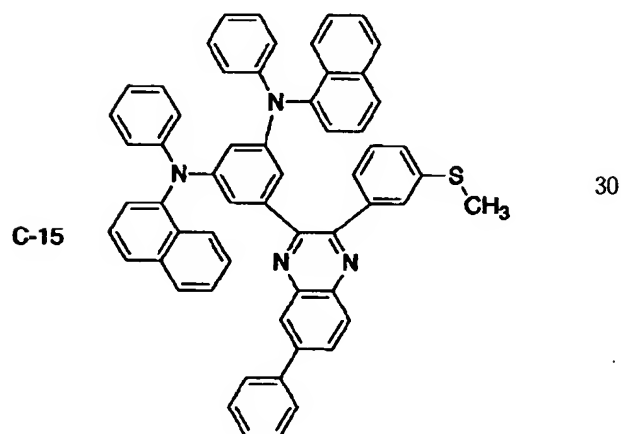
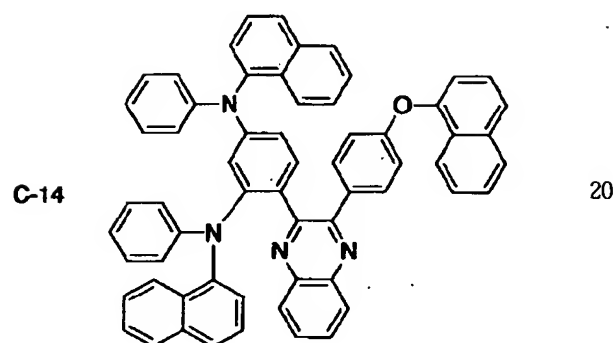
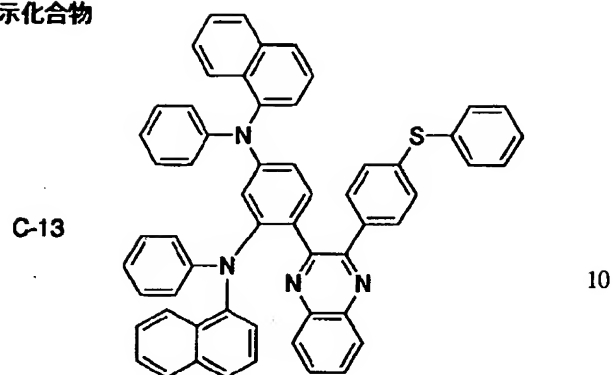


【化 2 9】

例示化合物



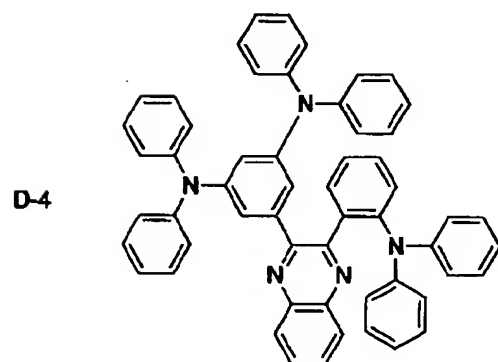
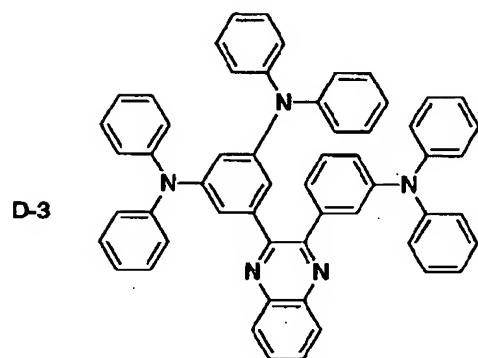
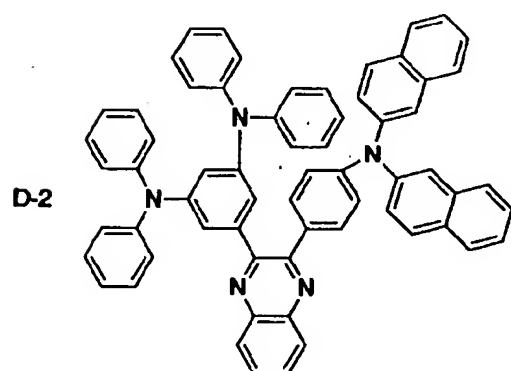
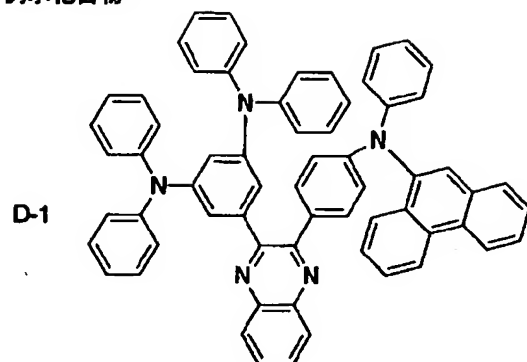
例示化合物



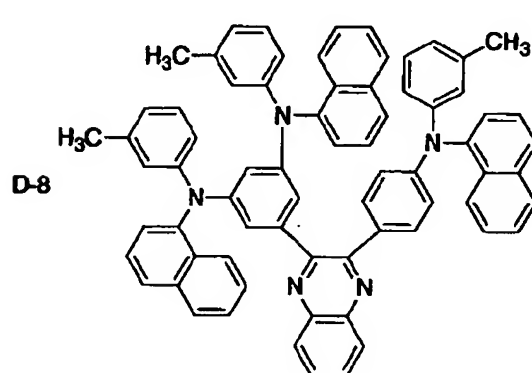
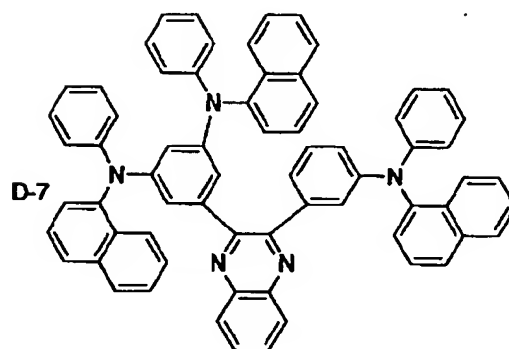
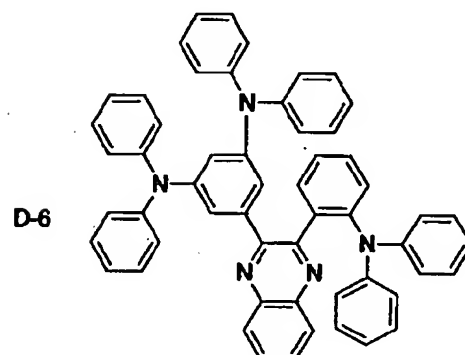
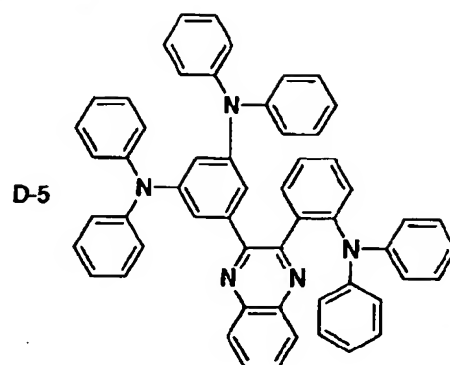
【 0 0 8 9】

【化 3 0】

例示化合物



例示化合物

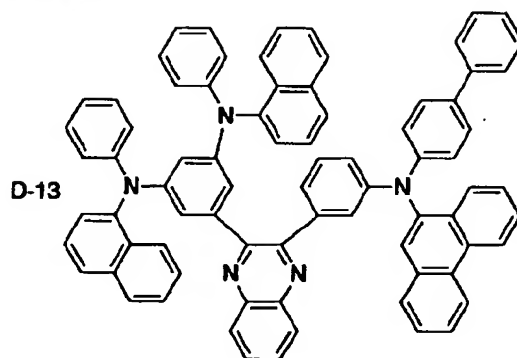
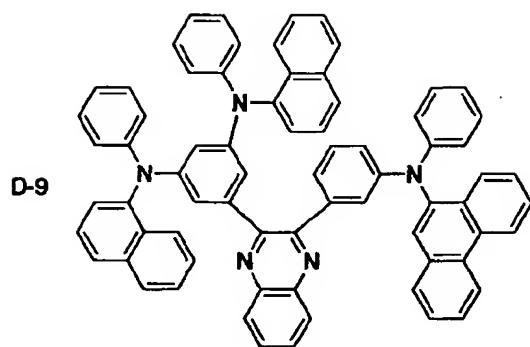


【 0 0 9 0】

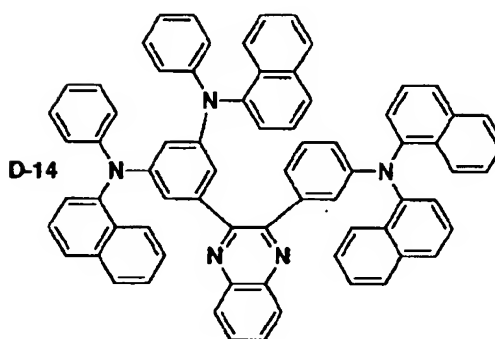
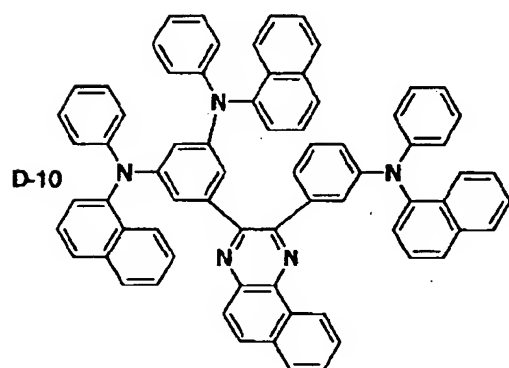
【化 3 1】

例示化合物

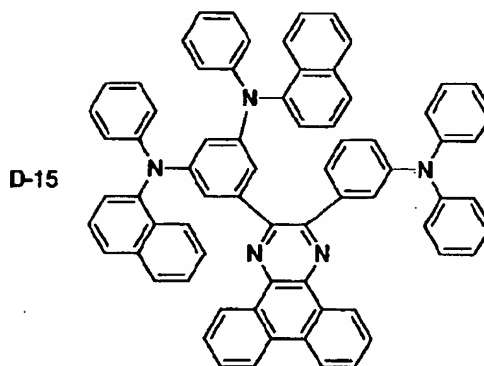
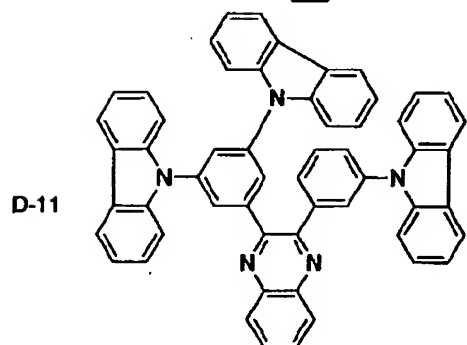
例示化合物



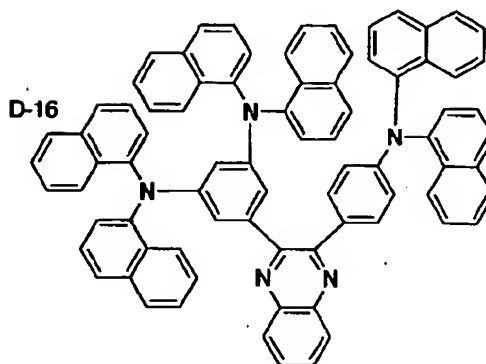
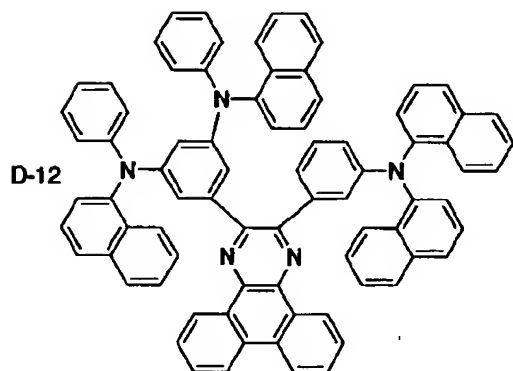
10



20



30



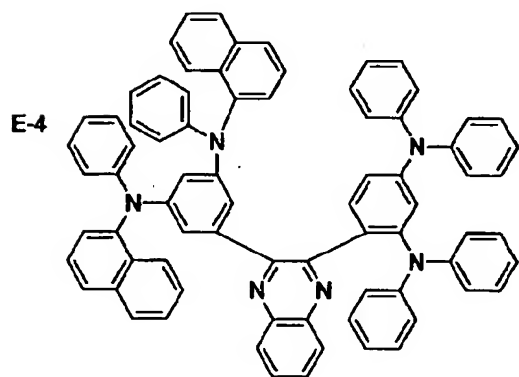
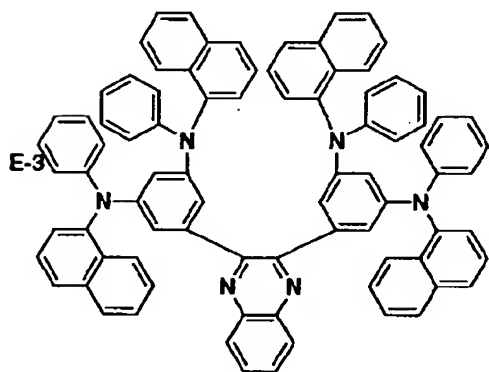
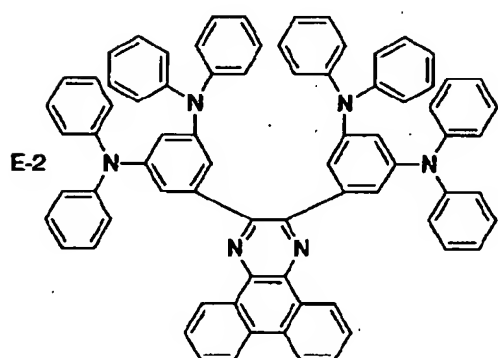
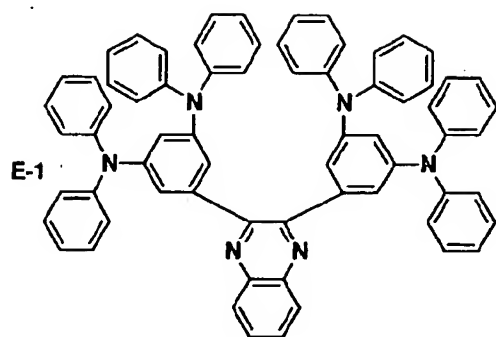
40

【0091】

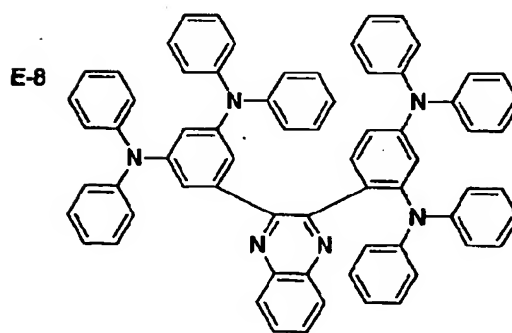
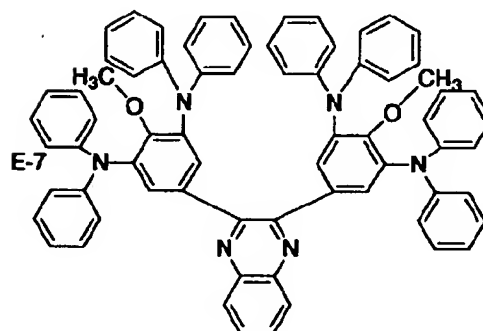
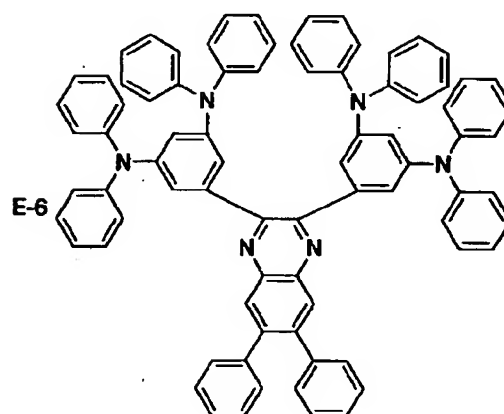
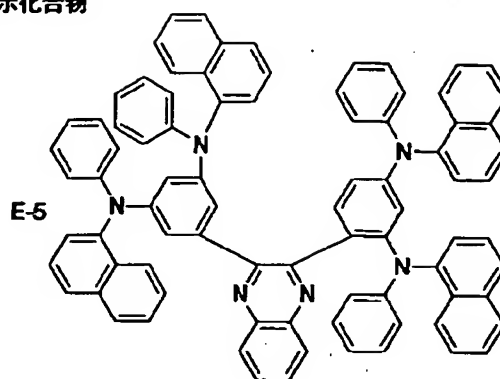
50

## 【化 3 2】

例示化合物



例示化合物



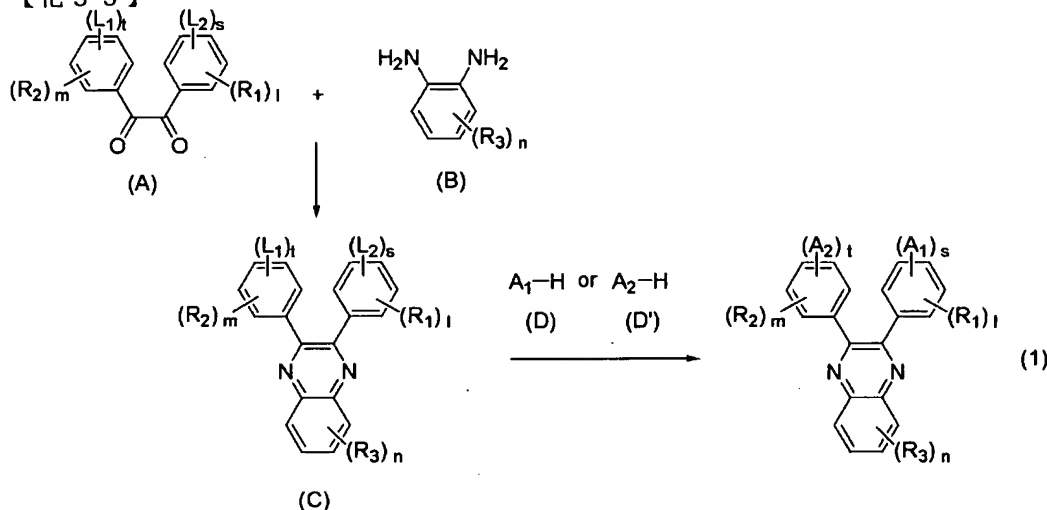
本発明の一般式（１）で表されるアミン化合物は其自体公知の方法により製造することができる。

【 0 0 9 3 】

一般式（１）で表されるアミン化合物の製造（化３３）

【 0 0 9 4 】

【化 3 3】



【 0 0 9 5 】

〔式中、 $R_1 \sim R_3$ 、 $A_1$  および  $A_2$ 、 $l$ 、 $m$ 、 $n$ 、 $s$  および  $t$  は一般式 (1) と同様の意味を表し、 $L_1$  および  $L_2$  はハロゲン原子あるいはトリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表す〕

【 0 0 9 6 】

すなわち、一般式 (A) で表される化合物と、一般式 (B) で表されるジアミン化合物を反応させ、一般式 (C) で表されるキノキサリン化合物を製造し、その後、一般式 (C) で表されるキノキサリン化合物の脱離基 ( $L_1$  および/または  $L_2$ ) を一般式 (D) および/または一般式 (D') で表されるアミン化合物により置換することで、一般式 (1) で表されるアミン化合物を製造することができる。尚、一般式 (C) で表されるキノキサリン化合物の製造は、一般式 (A) で表される化合物と、一般式 (B) で表されるジアミン化合物を、有機溶媒 (例えば、イソプロパノール、2-メトキシエタノール等の極性溶媒) 中、加熱することで実施することができる。また、一般式 (C) で表される化合物と一般式 (D) および/または一般式 (D') で表されるアミノ化合物との反応は、一般式 (C) で表される化合物と、一般式 (D) および/または一般式 (D') で表される化合物を、塩基 (例えば、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、tert-ブトキシカリウム、tert-ブトキシナトリウム等の無機塩基)、およびパラジウム触媒 [例えば、テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム、酢酸パラジウム/トリ (tert-ブチル) ホスフィン、酢酸パラジウム/ジシクロヘキシルフェニルホスフィン、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム/トリ (tert-ブチルホスフィン)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム/ジ (tert-ブチル) フェニルホスフィン、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム/ジ (tert-ブチル) シクロヘキシルホスフィン] の存在下、室温または加熱条件で反応させる方法により実施することができる。

【 0 0 9 7 】

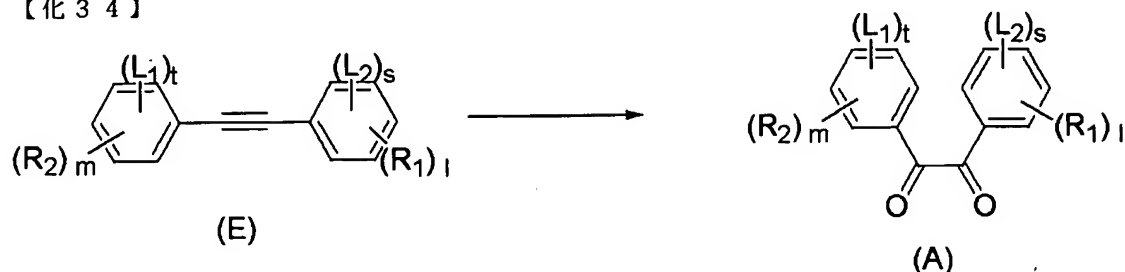
さらには、一般式 (C) で表される化合物と、一般式 (D) および／または一般式 (D') で表される化合物の反応は、塩基 (例えば、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム) および銅触媒 (例えば、銅粉、塩化銅、臭化銅、ヨウ化銅) の存在下に加熱することによっても実施することができる。

【0098】

尚、一般式 (A) で表される化合物は、例えば、以下の工程 (化34) により製造することができる。

【0099】

【化34】



10

【0100】

〔式中、 $L_1$  および  $L_2$ 、 $R_1$  および  $R_2$ 、 $l$ 、 $m$ 、 $s$  および  $t$  は一般式 (1) および (2) と同様の意味を表す〕

【0101】

すなわち、一般式 (E) で表されるアセチレン誘導体を酸化剤 (例えば、過マンガン酸カリウム) により酸化することで、一般式 (A) で表される化合物を製造することが出来る。

20

【0102】

次に本発明の有機電界発光素子について説明する。本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、一般式 (1) で表されるアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。有機電界発光素子は、通常一对の電極間に少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入成分を含有する正孔注入輸送層および/または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層などの電荷注入輸送層を設けることもできる。

【0103】

例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および/または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層を兼ねた型の素子構成として一層型の素子構成とすることができる。また、発光層が正孔注入機能および/または正孔輸送機能に乏しい場合には発光層の陽極側に正孔注入輸送層を設けた二層型の素子構成、発光層が電子注入機能および/または電子輸送機能に乏しい場合には発光層の陰極側に電子注入輸送層を設けた二層型の素子構成とすることができる。さらには発光層を正孔注入輸送層と電子注入輸送層で挟み込んだ構成の三層型の素子構成とすることも可能である。

30

【0104】

また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

40

【0105】

本発明の有機電界発光素子において、一般式 (1) で表されるアミン化合物は、電荷注入輸送層 (正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層) および/または発光層の構成成分として使用することが好ましく、発光層の構成成分として使用することがより好ましい。

【0106】

本発明の有機電界発光素子において、一般式 (1) で表されるアミン化合物は、単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

50

## 【0107】

本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定されるものではないが、例えば、(EL-1)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(EL-2)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(EL-3)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(EL-4)陽極/発光層/陰極型素子(図4)、などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ形の(EL-5)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。また、(EL-4)の型の素子構成としては、発光層として発光成分を一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子、(EL-6)発光層として正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(EL-7)発光層として正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(EL-8)発光層として発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図8)のいずれであってもよい。

10

## 【0108】

本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限定されるものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数設けることも可能である。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層を発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層および/または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。

20

## 【0109】

好ましい有機電界発光素子の構成は、(EL-1)型素子、(EL-2)型素子、(EL-5)型素子、(EL-6)型素子または(EL-7)型素子であり、より好ましくは、(EL-1)型素子、(EL-2)型素子または(EL-7)型素子である。

## 【0110】

以下、本発明の有機電界発光素子の構成要素に関し、詳細に説明する。なお、例として(図1)に示す(EL-1)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子を取り上げて説明する。

## 【0111】

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

30

## 【0112】

本発明の有機電界発光素子は基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定されるものではないが、透明ないし半透明である基板が好ましく、材質としては、ソーダライムガラス、ボロシリケートガラス等のガラスおよびポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の透明性高分子が挙げられる。また、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなる基板を使用することもできる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

40

## 【0113】

陽極2としては、仕事関数の比較的大きい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陽極に使用する電極材料としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化インジウム( $\text{In}_2\text{O}_3$ )、酸化錫( $\text{SnO}_2$ )、酸化亜鉛、ITO(インジウム・チン・オキシド: Indium Tin Oxide)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

## 【0114】

陽極は、これらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。

50

## 【0115】

また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 $\Omega/\square$ 以下、より好ましくは、5～50 $\Omega/\square$ 程度に設定する。

## 【0116】

陽極の厚みは使用する電極材料の材質にもよるが、一般に、5～1000nm程度、より好ましくは、10～500nm程度に設定する。

## 【0117】

正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔（ホール）の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

10

## 【0118】

本発明の電界発光素子の正孔注入輸送層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物（例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールアミン誘導体、トリアリールメタン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールなど）を少なくとも1種使用して形成することができる。

## 【0119】

正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、または複数併用してもよい。

20

## 【0120】

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、正孔注入輸送層に一般式(1)で表されるアミン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物以外の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体（例えば、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ]-1, 1'-ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]-1, 1'-ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]-1, 1'-ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ]-1, 1'-ビフェニル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]-1, 1'-ビフェニル、1, 1'-ビス[4'-[N, N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン、9, 10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3, 8-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N, N-ビス[4", 4"'-ビス[N', N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル-4-イル]アニリン、N, N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 3-ジアミノベンゼン、N, N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 4-ジアミノベンゼン、5, 5"-ビス[4-(ビス[4-メチルフェニル]アミノ)フェニル-2, 2': 5', 2"-ターチオフェン、1, 3, 5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4, 4', 4"-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス[N, N-ビス(4"'-tert-ブチルビフェニル-4"-イル)アミノ]トリフェニルアミン、1, 3, 5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノ)ベンゼンなど、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体がより好ましい。

30

40

## 【0121】

一般式(1)で表されるアミン化合物と他の正孔注入機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物の含有量は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.5～99.9重量%、さらに好ましくは3～97重量%である。

## 【0122】

50



発光層 4 は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。

【0123】

発光層は、一般式 (1) で表されるアミン化合物および／または他の発光機能を有する化合物を少なくとも一種用いて形成することができる。

【0124】

一般式 (1) で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化合物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカサイクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9, 10-ジフェニルアントラセン、9, 10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1, 4-ビス(9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4, 4'-ビス(9''-エチニルアントラセニル)ビフェニル、ジベンゾ[f,f]ジインデノ[1,2,3-cd:1',2',3'-lm]ペリレン誘導体〕、トリアリールアミン誘導体(例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる)、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、スチルベン誘導体〔例えば、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル、4, 4'-ビス[(1, 1, 2-トリフェニル)エテニル]ビフェニル〕、クマリン誘導体(例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500)、ピラン誘導体(例えば、DCM1、DCM2)、オキサゾン誘導体(例えば、ナイルレッド)、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等を挙げることができる。一般式 (1) で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。

【0125】

また、本発明の有機電界発光素子の発光層には、一般式 (1) で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物として、燐光(三重項発光)性の化合物も使用することが可能である。

【0126】

ここで燐光発光性の化合物としては、例えば、トリス(2-フェニルピリミジル)イリジウム錯体、トリス[2-(2'-フルオロフェニル)ピリジル]イリジウム錯体、ビス(2-フェニルピリジル)アセチルアセトナトイリジウム錯体、ビス[2-(2', 4'-ジフルオロフェニル)ピリジル]アセチルアセトナトイリジウム錯体、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23Hポルフィリン白金錯体等を挙げることができる。

【0127】

本発明の有機電界発光素子は、発光層に一般式 (1) で表されるアミン化合物を含有していることが好ましい。

【0128】

一般式(1)で表されるアミン化合物と一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%に調節する。

【0129】

また、発光層は、J.Appl.Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、ホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)から形成することも可能である。

【0130】

一般式(1)で表されるアミン化合物は発光層のホスト化合物として使用することもでき、またゲスト化合物として使用することも可能である。一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を挙げることができ、中でも多環芳香族化合物は好ましい。

【0131】

一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して、ゲスト化合物は、好ましくは、0.001から40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%、さらに好ましくは0.1~20重量%使用する

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、発光層に一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として含有する。

【0132】

一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として、他の発光機能を有する化合物と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物は、好ましくは、40.0%~99.9%であり、より好ましくは、60.0~99.9重量%である。

【0133】

ゲスト材料の使用量は、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して0.001~40重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。また、ゲスト材料は、単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

【0134】

また、一般式(1)で表されるアミン化合物を、ゲスト材料として用いて発光層を形成する場合、ホスト材料としては、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。

【0135】

一般式(1)で表されるアミン化合物をゲスト材料として使用する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物を、好ましくは、0.001~40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%、さらに好ましくは、0.1~20重量%使用する。

【0136】

電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能および/または注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

【0137】

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは電子注入輸送層に一般式(1)で表されるアミン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物以外の電子注入輸送機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。また、有機金属錯体としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム等

の有機ベリリウム錯体、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩等を挙げることができる。好ましくは、本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物または有機アルミニウム錯体である。ここで有機アルミニウム錯体とは、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体である。

【0138】

置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体としては、例えば、一般式(a)～一般式(c)で表される化合物を挙げることができる。

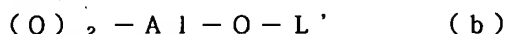
【0139】



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

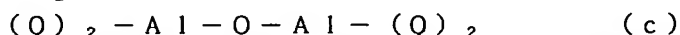
10

【0140】



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表し、O-L'はフェノラート配位子を表し、L'はフェニル基を有する炭素数6～24の炭化水素基を表す)

【0141】



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

【0142】

置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、

20

【0143】

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,5,6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、

30

40

50

## 【0144】

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウムを挙げることができる。

10

## 【0145】

電子注入機能を有する化合物は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

## 【0146】

陰極6としては、比較的工作関数の小さい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陰極に使用する電極材料としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、リチウムフルオライド、安息香酸リチウム、酢酸リチウム等の有機酸のリチウム塩、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄を挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

20

## 【0147】

陰極はこれらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法により電子注入輸送層の上に形成することができる。

## 【0148】

また、陰極は一層構造であってもよく、多層構造であってもよい。陰極のシート電気抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下とするのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極材料にもよるが、通常5~1000nm、好ましくは、10~500nmとする。本発明の有機電界発光素子の発光を高率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極は、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極または陰極の材料、厚みを設定することが好ましい。

30

## 【0149】

また、本発明の有機電界発光素子は、正孔注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーを含有していてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定されるものではないが、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランが挙げられ、好ましくは、ルブレンである。

## 【0150】

一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定されるものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層)の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成する全体量の0.01~50重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。

40

## 【0151】

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定されるもの

50

ではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロジェット法、インクジェット法）を使用することができる。真空蒸着法により正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定されるものではないが、通常、 $10^{-5}$  Torr 程度以下の真空下で、 $50 \sim 500^\circ\text{C}$  程度のボート温度（蒸着源温度）、 $-50 \sim 300^\circ\text{C}$  程度の基板温度で、 $0.005 \sim 50 \text{ nm/sec}$  程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することが好ましい。連続で形成することにより諸特性に優れた有機電界発光素子を製造することが可能となる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を使用して形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

10

#### 【0152】

溶液塗布法により各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等とを、溶媒に溶解または分散させて塗布液とする。溶媒としては、例えば、有機溶媒（ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル、乳酸エチル等のエステル系溶媒、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタン、アニソール等のエーテル系溶媒、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒）、水を挙げることができる。溶媒は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層の成分を溶媒に分散させる場合には、分散方法として、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を使用して微粒子状に分散する方法を使用することができる。

20

30

#### 【0153】

また、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリーレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフエンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などの高分子化合物を挙げることができる。バインダー樹脂は単独で使用してもよく、また、複数併用してもよい。塗布液の濃度は、特に限定されるものではないが、実施する塗布法により所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、通常、 $0.1 \sim 50$  重量%、好ましくは、 $1 \sim 30$  重量%に設定する。バインダー樹脂を使用する場合、その使用量は特に限定されるものではないが、通常、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する成分とバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含有率が（一層型の素子を形成する場合には各成分の総量に対して）、 $5 \sim 99.9$  重量%、好ましくは、 $10 \sim 99$  重量%となるように使用する。

40

#### 【0154】

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層の膜厚は、特に限定されるものではないが、通常、 $5 \text{ nm} \sim 5 \mu\text{m}$  とする。

#### 【0155】

50

また、上記の条件で作製した本発明の有機電界発光素子は、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けることが好ましく、また、素子を不活性物質中（例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油）に封入して保護することもできる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物）、さらには、光硬化性樹脂を挙げることができる。保護層に使用する材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。保護層は一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

#### 【0156】

また、本発明の有機電界発光素子は、電極に保護膜として金属酸化物膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。

#### 【0157】

本発明の有機電界発光素子は、陽極の表面に界面層（中間層）を設けることもできる。界面層の材質としては、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアン誘導体等を挙げることができる。

#### 【0158】

さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、酸、アンモニア／過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

#### 【0159】

本発明の有機電界発光素子は、通常、直流駆動型の素子として使用することができるが、交流駆動型の素子としても使用することができる。また、本発明の有機電界発光素子は、セグメント型、単純マトリック駆動型等のパッシブ駆動型であってもよく、TFT（薄膜トランジスタ）型、MIM（メタルーインスレーターーメタル）型等のアクティブ駆動型であってもよい。駆動電圧は通常、2～30Vである。本発明の有機電界発光素子は、パネル型光源（例えば、時計、液晶パネル等のバックライト）、各種の発光素子（例えば、LED等の発光素子の代替）、各種の表示素子（例えば、情報表示素子（パソコンモニター、携帯電話・携帯端末用表示素子））、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

#### 【0160】

以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されるものではない。

#### 【実施例1】

#### 【0161】

例示化合物A-2の製造

(1) 2-(4'-プロモフェニル)-3-フェニルキノキサリンの製造  
4-プロモベンジル 40.46g (0.14mol) および 1,2-フェニレンジアミン 15.12g (0.14mol) をイソプロパノール 300ml に懸濁させ、80℃で4時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-(4'-プロモフェニル)-3-フェニルキノキサリン 38.54g を無色の結晶として得た。

#### 【0162】

(2) 例示化合物A-2の製造

2-(4'-プロモフェニル)-3-フェニルキノキサリン 3.62g (10mmol)、N-(2-ナフチル)アニリン 2.19g (10mmol)、tert-ブトキシナトリウム 1.34g (14mmol)、酢酸パラジウム 22mg、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン 25mg および トルエン 40g よりなる混合物をアルゴン気流下、90℃に加熱し、同温度で6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温まで冷却し、不溶物を

ろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/*n*-ヘキサンより再結晶し、目的とする例示化合物 A-2 を淡黄色結晶として 2.04 g 得た。

FD-MS: 499 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値 (%); C, 86.55; H, 5.04; N, 8.41

分析値 (%); C, 86.7; H, 5.0; N, 8.3

さらに、該化合物を 280℃、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa で昇華精製した。

#### 【実施例 2】

##### 【0163】

例示化合物 A-6 の製造

10

実施例 1 の (2) において、N-(2-ナフチル)アニリン 2.19 g (10 mmol) を使用する代わりに、N-(9-アントリル)アニリン 2.70 g (10 mmol) を使用した以外は、実施例 1 の (2) に記載の操作に従い、例示化合物 A-6 の化合物を淡黄色結晶として 2.63 g 得た。

FD-MS: 549 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値 (%); C, 87.40; H, 4.96; N, 7.64

分析値 (%); C, 87.5; H, 5.0; N, 7.5

さらに、該化合物を 300℃、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa で昇華精製した。

#### 【実施例 3】

##### 【0164】

20

例示化合物 A-8 の製造

実施例 1 の (2) において、N-(2-ナフチル)アニリン 2.19 g (10 mmol) を使用する代わりに、N-(9'-アントリル)-1-ナフチルアミン 3.20 g (10 mmol) を使用した以外は、実施例 1 の (2) に記載の操作に従い、例示化合物 A-8 の化合物を淡黄色結晶として 3.15 g 得た。

FD-MS: 599 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値 (%); C, 88.12; H, 4.87; N, 7.01

分析値 (%); C, 88.1; H, 4.9; N, 7.0

さらにこの化合物を 310℃、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa で昇華精製した。

#### 【実施例 4】

30

##### 【0165】

例示化合物 A-17 の製造

(1) - (4'-プロモフェニル) - 3 - (4''-フェニルフェニル) キノキサリンの製造

4-プロモ-4'-ジプロモベンジル 28.60 g (0.10 mol) および 1, 2-フェニレンジアミン 10.80 g をイソプロパノール 150 ml に懸濁させ、80℃で 5 時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-(4'-プロモフェニル) - 3 - (4''-フェニルフェニル) キノキサリン 25.42 g を無色の結晶として得た。

##### 【0166】

40

(2) 例示化合物 A-17 の製造

2-(4'-プロモフェニル) - 3 - (4''-フェニルフェニル) キノキサリン 4.37 g (10 mmol)、N-(2-ナフチル)アニリン 2.19 g (10 mmol)、tert-ブトキシナトリウム 1.34 g (14 mmol)、酢酸パラジウム 22 mg、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン 25 mg およびトルエン 40 g よりなる混合物をアルゴン気流下、90℃に加熱し、同温度で 6 時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温まで冷却し、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/*n*-ヘキサンより再結晶し、目的とする例示化合物 A-17 を淡黄色結晶として 3.84 g 得た。

FD-MS: 575 ( $M^+$ )

50

元素分析：計算値(%)：C, 87.62; H, 5.08; N, 7.30

分析値(%)：C, 87.7; H, 5.0; N, 7.3

さらに、該化合物を310℃、 $2.0 \times 10^{-4}$  Paで昇華精製した。

【実施例5】

【0167】

例示化合物A-34の製造

(1) 2-(4'-プロモフェニル)-3-[4''-(キノリン-2''-イル)フェニル]キノキサリンの製造

4-プロモ-4'-(キノリン-2''-イル)ベンジル41.60g (0.1mol)、1,2-フェニレンジアミン10.80g (0.1mol)をイソプロパノール200mlに懸濁させ、80℃に加熱して6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-(4'-プロモフェニル)-3-[4''-(キノリン-2''-イル)フェニル]キノキサリン42.65gを得た。

【0168】

(2) 例示化合物A-34の製造

2-(4'-プロモフェニル)-3-[4''-(キノリン-2''-イル)フェニル]キノキサリン4.88g (10mmol)、N-(2-ナフチル)アニリン2.19g (10mmol)、tert-ブトキシナトリウム1.34g (14mmol)、酢酸パラジウム22mg、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン0.025gおよびトルエン40gよりなる混合物をアルゴン気流下、90℃に加熱し、同温度で6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温まで冷却し、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/n-ヘキサンより再結晶し、目的とする例示化合物A-34を淡黄色結晶として3.84g得た。

FD-MS: 626 ( $M^+$ )

元素分析：計算値(%)：C, 86.24; H, 4.82; N, 8.94

分析値(%)：C, 86.3; H, 4.7; N, 9.0

さらに、該化合物を320℃、 $2.0 \times 10^{-4}$  Paで昇華精製した。

【実施例6】

【0169】

例示化合物A-62の製造

(1) 2-(3'-プロモフェニル)-3-(9'', 9''-ジメチル-9''H-フルオレン-2''-イル)キノキサリンの製造

1-(3'-プロモフェニル)-2-(9'', 9''-ジメチル-9''H-フルオレン-2''-イル)エタン-1,2-ジオン40.4g (0.1mol)、1,2-フェニレンジアミン10.80g (0.1mol)をイソプロパノール200mlに懸濁させ、80℃に加熱して6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-(3'-プロモフェニル)-3-(9'', 9''-ジメチル-9''H-フルオレン-2''-イル)キノキサリン43.25gを得た。

【0170】

(2) 例示化合物A-62の製造

2-(4'-プロモフェニル)-3-(9'', 9''-ジメチル-9''H-フルオレン-2''-イル)キノキサリン4.76g (10mmol)、N-(2-ナフチル)アニリン2.19g (10mmol)、tert-ブトキシナトリウム1.34g (14mmol)、酢酸パラジウム22mg、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン0.025gおよびトルエン40gよりなる混合物をアルゴン気流下、90℃に加熱し、同温度で6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温まで冷却し、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/n-ヘキサンより再結晶し、目的とする例示化合物A-62を淡黄色結晶として4.23g得た。



FD-MS : 665 ( $M^+$ )

元素分析 : 計算値 (%) ; C, 88.39 ; H, 5.30 ; N, 6.31

分析値 (%) ; C, 88.4 ; H, 5.3 ; N, 6.3

さらに、該化合物を  $340^{\circ}\text{C}$ 、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa で昇華精製した。

【実施例 7】

【0171】

例示化合物 B-2 の製造

(1) 2, 3-ビス(4'-プロモフェニル)キノキサリンの製造

4, 4'-ジプロモベンジル 51.52 g ( $0.14 \text{ mol}$ ) および 1, 2-フェニレンジアミン 15.12 g ( $0.14 \text{ mol}$ ) をイソプロパノール 300 ml に懸濁させ、  
80 $^{\circ}\text{C}$  で 4 時間加熱攪拌を行った。その後、室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2,  
3-ビス(4'-プロモフェニル)キノキサリン 53.44 g を無色の結晶として得た。

【0172】

(2) 例示化合物 B-2 の製造

2, 3-ビス(4'-プロモフェニル)キノキサリン 4.40 g ( $10 \text{ mmol}$ )、N-  
(9-フェナントリル)-1-ナフチルアミン 6.38 g ( $20 \text{ mmol}$ ) および tert-  
ブトキシナトリウム 2.65 g ( $27.6 \text{ mmol}$ )、酢酸パラジウム 45 mg および  
トルエン 100 g よりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン 0.12 ml  
を添加し、90 $^{\circ}\text{C}$  に加熱し、さらに同温度で 6 時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ  
別し、ろ液を水洗した後、ろ液からトルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラム  
クロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする  
例示化合物 B-2 の化合物を淡黄色結晶として 4.89 g 得た

FD-MS : 916 ( $M^+$ )

元素分析 : 計算値 (%) ; C, 89.06 ; H, 4.84 ; N, 6.11

分析値 (%) ; C, 89.1 ; H, 4.8 ; N, 6.1

さらにこの化合物を  $380^{\circ}\text{C}$ 、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa の条件で昇華精製した。

【実施例 8】

【0173】

例示化合物 B-3 の製造

実施例 7 の (2) において、N-(9-フェナントリル)-1-ナフチルアミン 6.3  
8 g ( $20 \text{ mmol}$ ) を使用する代わりに、N-(9-フェナントリル)-4-フェニル  
アニリン 6.90 g ( $20 \text{ mmol}$ ) を使用した以外は、実施例 7 の [2] に記載の操作  
に従い、例示化合物 B-3 の化合物を淡黄色結晶として 5.29 g 得た。

FD-MS : 968 ( $M^+$ )

元素分析 : 計算値 (%) ; C, 89.23 ; H, 4.99 ; N, 5.78

分析値 (%) ; C, 89.2 ; H, 5.0 ; N, 5.8

さらにこの化合物を  $360^{\circ}\text{C}$ 、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa の条件で昇華精製した。

【実施例 9】

【0174】

例示化合物 B-7 の製造

実施例 7 の (2) において、N-(9-フェナントリル)-1-ナフチルアミン 6.3  
8 g ( $20 \text{ mmol}$ ) を使用する代わりに、N-(9-フェナントリル)アニリン 5.3  
8 g ( $20 \text{ mmol}$ ) を使用した以外は、実施例 7 の (2) に記載の操作に従い、例示化  
合物 B-7 の化合物を淡黄色結晶として 4.92 g 得た。

FD-MS : 816 ( $M^+$ )

元素分析 : 計算値 (%) ; C, 88.21 ; H, 4.93 ; N, 6.86

分析値 (%) ; C, 88.3 ; H, 4.9 ; N, 6.8

さらにこの化合物を  $390^{\circ}\text{C}$ 、 $2.0 \times 10^{-4}$  Pa の条件で昇華精製した。

【実施例 10】

【0175】

10

20

30

40

50

## 例示化合物 B-27 の製造

実施例 7 の (2) において、N-(9-フェンアトリル)-1-ナフチルアミン 6.38 g (20 mmol) を使用する代わりに、N-(3-フルオランテニル) アニリン 5.86 g (20 mmol) を使用した以外は、実施例 7 の (2) に記載の操作に従い、例示化合物 B-27 の化合物を淡黄色結晶として 3.86 g 得た。

FD-MS: 864 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値 (%); C, 88.86; H, 4.66; N, 6.48

分析値 (%); C, 88.9; H, 4.7; N, 6.5

さらにこの化合物を 390℃、 $1.0 \times 10^{-4}$  Pa の条件で昇華精製した。

【実施例 11】

10

【0176】

## 例示化合物 B-34 の製造

実施例 7 の (2) において、N-(9-フェナントリル)-1-ナフチルアミン 6.38 g (20 mmol) を使用する代わりに、N-(9-フェニル-10-アントラセニル) アニリン 6.90 g (20 mmol) を使用した以外は実施例 7 の (2) に記載の操作に従い、例示化合物 B-34 の化合物を淡黄色結晶として 6.30 g 得た。

FD-MS: 968 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値 (%); C, 89.23; H, 4.99; N, 5.78

分析値 (%); C, 89.2; H, 5.0; N, 5.8

さらにこの化合物を 390℃、 $3.0 \times 10^{-4}$  Pa の条件で昇華精製した。

20

【実施例 12】

【0177】

## 例示化合物 B-59 の製造

(1) 2, 3-ビス(3'-プロモフェニル)キノキサリンの製造

3, 3'-ジプロモベンジル 51.52 g (0.14 mol) および 1, 2-フェニレンジアミン 15.12 g (0.14 mol) をイソプロパノール 300 ml に懸濁させ、80℃で4時間加熱攪拌を行った。その後、室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2, 3-ビス(3'-プロモフェニル)キノキサリン 44.36 g を無色の結晶として得た。

【0178】

(2) 例示化合物 B-59 の製造

30

2, 3-ビス(3'-プロモフェニル)キノキサリン 4.40 g (10 mmol)、N-(9-フェナントリル) アニリン 5.38 g (20 mmol) および tert-ブトキシナトリウム 2.65 g (27.6 mmol)、酢酸パラジウム 45 mg および トルエン 100 g よりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン 0.12 ml を添加し、90℃に加熱し、さらに同温度で6時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液からトルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物 B-59 の化合物を淡黄色結晶として 4.89 g 得た。

FD-MS: 816 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値 (%); C, 88.21; H, 4.93; N, 6.86

40

分析値 (%); C, 88.2; H, 4.9; N, 6.9

さらにこの化合物を 380℃、 $1.4 \times 10^{-4}$  Pa の条件で昇華精製した。

【実施例 13】

【0179】

## 例示化合物 B-84 の製造

(1) 2-(3'-プロモフェニル)-3-(4"-プロモフェニル)キノキサリンの製造

3, 4'-ジプロモベンジル 51.52 g (0.14 mol) および 1, 2-フェニレンジアミン 15.12 g (0.14 mol) をイソプロパノール 300 ml に懸濁させ、80℃で4時間加熱攪拌を行った。その後、室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-

50

(3'-プロモフェニル)-3-(4"-プロモフェニル)キノキサリン41.56gを無色の結晶として得た。

【0180】

(2) 例示化合物B-84の製造

2-(3'-プロモフェニル)-3-(4"-プロモフェニル)キノキサリン4.40g (10mmol)、N-(9-フェナントリル)アニリン5.38g (20mmol) およびtert-ブトキシナトリウム2.65g (27.6mmol)、酢酸パラジウム45mg およびトルエン100gよりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン0.12mlを添加し、90℃に加熱し、さらに同温度で6時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液からトルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物B-84の化合物を淡黄色結晶として3.98g得た

FD-MS: 816 ( $M^+$ )

元素分析: 計算値(%); C, 88.21; H, 4.93; N, 6.86

分析値(%); C, 88.2; H, 4.9; N, 6.9

さらにこの化合物を380℃、 $1.0 \times 10^{-4}$  Paの条件で昇華精製した。

【実施例14】

【0181】

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコク  
リーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、イソプロパノールを用いて超音波洗浄し  
た。この基板を窒素ガスにより乾燥し、その後、イソプロパノールから煮沸洗浄し、さら  
にUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を $3 \times 10^{-4}$  P  
aに減圧した。まず、ITO透明電極上に、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(2-  
ナフチル)-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニルを蒸着速度0.2nm/sec  
で75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上に発  
光層として、例示化合物A-6と、ルブレンを、異なる蒸着源から蒸着速度0.2nm/  
secと蒸着速度0.01nm/secで40nmの厚さに共蒸着し、発光層を形成した  
。さらに、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで  
30nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その  
上に、陰極としてリチウムフルオライドを蒸着速度0.2nm/secで1nmの厚さに  
蒸着し、その上から、アルミニウムを蒸着速度2.0nm/secで200nmの厚さに  
蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保  
ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、室温、乾燥雰囲気下、  
10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.2V、輝度870cd/m<sup>2</sup>  
の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は3300時間であった。尚、半減時間  
後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例15】

【0182】

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代  
わりに、例示化合物A-8の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、  
有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調  
べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し  
、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例16】

【0183】

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代  
わりに、例示化合物A-17の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い

10

20

30

40

50

、有機電界発光素子を作製した。素子からは、黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した。

【実施例17】

【0184】

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代わりに、例示化合物A-34の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

10

【実施例18】

【0185】

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代わりに、例示化合物B-3の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例19】

【0186】

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代わりに、例示化合物B-27の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

20

【実施例20】

【0187】

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代わりに、例示化合物B-34の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

30

【0188】

比較例1:

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代わりに、2, 3, 6, 7-テトラフェニルキノキサリンを使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置したところ、素子からの発光が減衰していることが確認された。

【0189】

比較例2:

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物A-6の化合物を使用する代わりに、9, 10-ジ(2'-ナフチル)アントラセンを使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置したところ、素子からの発光が減衰していることが確認された。

40

【0190】

【表 1】

第1表

有機電界発光素子	初期特性(室温)		半減期(室温)
	輝度 (cd/cm <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例15	880	6.2	3100
実施例16	920	6.3	3400
実施例17	730	6.1	3100
実施例18	910	6.1	4100
実施例19	950	6.2	4200
実施例20	920	6.4	3900
比較例1	590	6.1	460
比較例2	680	7.3	2300

## 【実施例 2 1】

## 【0191】

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、イソプロパノールを用いて、超音波洗浄し、さらにイソプロパノールで煮沸洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を $2 \times 10^{-4}$  Paに減圧した。

## 【0192】

先ず、ITO透明電極上に、4, 4', 4"-トリス(2"-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミンを蒸着速度0.1nm/secで60nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(2'-ナフチル)-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニルを蒸着速度0.2nm/secで20nmの厚さに蒸着し、第2正孔注入輸送層を形成した。次に正孔注入輸送層の上に、9, 10-ジ(2'-ナフチル)アントラセンを蒸着速度0.2nm/secで40nmの厚さに蒸着し、発光層を形成した。発光層の上に、例示化合物A-2の化合物を蒸着速度0.2nm/secで10nmの厚さに蒸着し、第1電子注入輸送層を形成した。さらに、その上にトリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで20nmの厚さに蒸着し、第2電子注入輸送層を形成した。この上に陰極としてアルミニウム/リチウム合金を蒸着速度2.0nm/secで10nmの厚さに蒸着し、最後にアルミニウムを蒸着速度2.0nm/secで100nmの厚みに蒸着して電極とし、有機電界発光素子を作製した。

## 【0193】

尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で連続駆動させた。初期には、6.1V、輝度430cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が確認された。輝度の半減期は950時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

## 【実施例 2 2】

## 【0194】

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を中性洗剤、セミコクリ

ーン（フルウチ化学製）、超純水、イソプロパノール煮沸洗浄により洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにU/Vオゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を $2 \times 10^{-4}$  Paに減圧した。

#### 【0195】

ITO透明基板上にN, N'-ジフェニル-N, N'-(2'-ナフチル)-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニルを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物B-59の化合物とクマリン6を異なる蒸着源から蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ と蒸着速度 $0.02 \text{ nm/sec}$ で $40 \text{ nm}$ の厚みに共蒸着して、発光層を形成した。さらに、発光層の上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $30 \text{ nm}$ の厚みに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。その後、リチウムフルオライドを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $1 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、さらに、アルミニウムを蒸着速度 $2.0 \text{ nm/sec}$ で、 $150 \text{ nm}$ の厚さに蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は蒸着槽の減圧を保持したまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、室温で、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の低電流密度で連続駆動した。初期には $6.5 \text{ V}$ 、 $1200 \text{ cd/m}^2$ の緑色発光が確認された。輝度の半減期は $2500$ 時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。さらに、該素子を $100^\circ\text{C}$ で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した。

#### 【実施例23】

##### 【0196】

有機電界発光素子の作製

厚さ $150 \text{ nm}$ のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、イソプロパノール煮沸洗浄により洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにU/Vオゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を $2 \times 10^{-4}$  Paに減圧した。

##### 【0197】

ITO透明基板上にN, N'-ジフェニル-N, N'-(2'-ナフチル)-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニルを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $50 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物B-84の化合物とクマリン6を異なる蒸着源から蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ と蒸着速度 $0.02 \text{ nm/sec}$ で $40 \text{ nm}$ の厚みに共蒸着して、発光層を形成した。さらに、発光層の上に、例示化合物A-8の化合物を蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $20 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第1の電子注入輸送層を形成し、その上にトリス（8-キノリノラート）アルミニウムを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $10 \text{ nm}$ の厚みに蒸着し、第2の電子注入輸送層を形成した。その後、リチウムフルオライドを蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $1 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、さらに、アルミニウムを蒸着速度 $2.0 \text{ nm/sec}$ で、 $150 \text{ nm}$ の厚さに蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は蒸着槽の減圧を保持したまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、室温で、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の低電流密度で連続駆動した。初期には $6.2 \text{ V}$ 、 $1200 \text{ cd/m}^2$ の緑色発光が確認された。輝度の半減期は $2500$ 時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を $100^\circ\text{C}$ で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した。

#### 【実施例24】

##### 【0198】

有機電界発光素子の作製

厚さ $150 \text{ nm}$ のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、イソプロパノール煮沸洗浄により洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにU/Vオゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固

定し、蒸着槽を  $2 \times 10^{-4}$  Pa に減圧した。

【0199】

ITO 透明基板上に 4, 4', 4''-トリス(2'''-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミンを蒸着速度  $0.1 \text{ nm/sec}$  で  $60 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、第 1 正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物 B-2 の化合物を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $20 \text{ nm}$  の厚みに蒸着して、第 2 正孔輸送層を形成した。その上に、9, 10-ビス(2'-ナフチル)アントラセンと、2, 5, 8, 11-テトラ-tert-ブチルペリレンを異なる蒸着源から蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  と蒸着速度  $0.01 \text{ nm/sec}$  で  $40 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着して発光層を形成した。さらに、発光層の上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $20 \text{ nm}$  の厚みに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。その後、リチウムフルオライドを蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $1 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、さらに、アルミニウムを蒸着速度  $2.0 \text{ nm/sec}$  で、 $150 \text{ nm}$  の厚さに蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は蒸着槽の減圧を保持したまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、室温で、 $10 \text{ mA/cm}^2$  の低電流密度で連続駆動した。初期には  $6.2 \text{ V}$ 、 $560 \text{ cd/m}^2$  の青色発光が確認された。輝度の半減期は  $1500$  時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を  $100^\circ\text{C}$  で 1 時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した。

【実施例 25】

【0200】

有機電界発光素子の作製

厚さ  $150 \text{ nm}$  の ITO 透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、イソプロパノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、その後、イソプロパノールから煮沸洗浄し、さらに UV/オゾン洗浄した。次に、ITO 透明電極上に、ポリメチルメタクリレート(重量平均分子量  $25000$ )、N, N'-ジフェニル-N, N'-(2'-ナフチル)-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニル、例示化合物 A-2 の化合物、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムをそれぞれ重量比  $100:50:30:0.5$  の割合で含有する 3 重量% ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、 $120 \text{ nm}$  の発光層を形成した。次にこの発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着層を  $2 \times 10^{-4}$  Pa に減圧した。発光層の上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度  $2.0 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着(重量比  $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、室温で  $15 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $89 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $530 \text{ cd/m}^2$  の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は  $470$  時間であった。

【産業上の利用可能性】

【0201】

本発明により、新規なアミン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

【0202】

【図 1】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 2】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 3】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 4】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 5】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 6】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 7】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 8】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

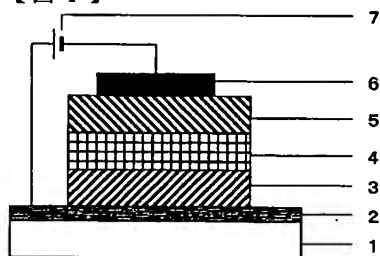
## 【符号の説明】

## 【0203】

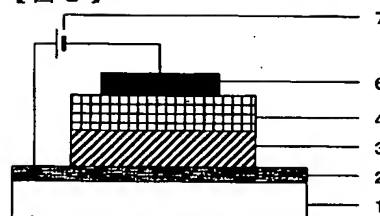
- 1：基板
- 2：陽極
- 3：正孔注入輸送層
- 3a：正孔注入輸送成分
- 4：発光層
- 4a：発光成分
- 5：電子注入輸送層
- 5'：電子注入輸送層
- 5a：電子注入輸送成分
- 6：陰極
- 7：電源

10

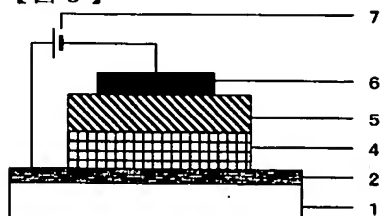
【図1】



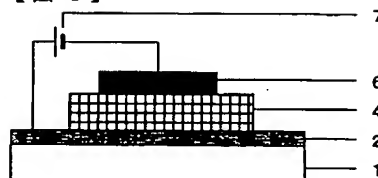
【図2】



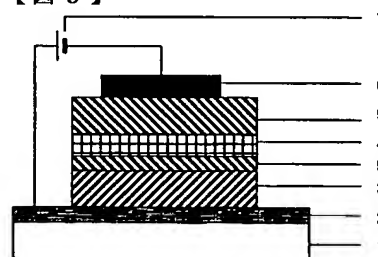
【図3】



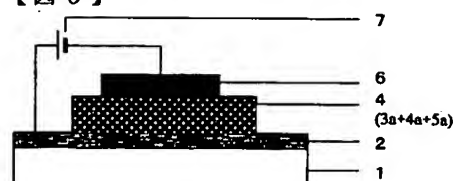
【図4】



【図5】

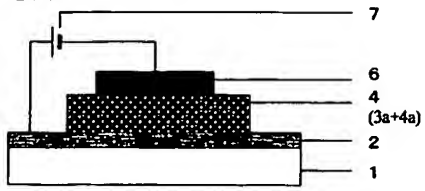


【図6】

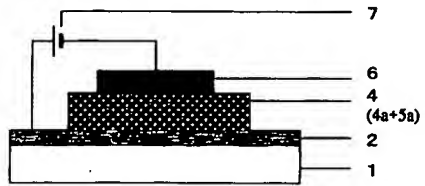




【図 7】



【図 8】



---

フロントページの続き

(51)Int. Cl.

F I

テーマコード (参考)

H 0 5 B 33/22

B

H 0 5 B 33/22

D

(72)発明者 島村 武彦

千葉県袖ヶ浦市長浦 5 8 0 - 3 2 三井化学株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB11 AB14 DB03

4C063 AA01 BB06 CC34 CC94 DD12 DD14 DD34 EE10